

# Ultraschnelle Ladungsträger- und Gitterdynamik in GaN- und GaAs-basierten Übergittern

## DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades

DOCTOR RERUM NATURALIUM

(Dr. rer. nat.)

im Fach Physik

Spezialisierung Experimentalphysik

eingereicht an der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der Humboldt-Universität zu Berlin

von

**M. Sc. Felix Mahler**

Präsidentin der Humboldt-Universität zu Berlin

Prof. Dr.-Ing. Dr. Sabine Kunst

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

Prof. Dr. Elmar Kulke

Gutachter/in: 1. Prof. Dr. Thomas Elsässer  
2. Prof. Dr. Ulrike Woggon  
3. Prof. Dr. W. Ted Masselink

Tag der Disputation: 18. März 2021



Im Rahmen dieser Dissertation wird mit Hilfe spektroskopischer Methoden zum einen die ultraschnelle Ladungsträgerkinetik in einem Galliumnitrid (GaN)-basierten Übergitter, zum anderen die piezoelektrische Elektron-Phonon-Wechselwirkung kohärenter zonengefalteter Phononen in Galliumarsenid (GaAs)-basierten Übergittern untersucht.

Aluminiumhaltige GaN-basierte Heterostrukturen u. a. in UV-LEDs weisen eine hohe Dichte an strukturellen Defekten auf, die die Effizienz solcher optoelektronischen Bauelemente mindern. Für ein besseres Verständnis der defektbedingten Ladungsträgerkinetik werden spektral- und zeitaufgelöste Photolumineszenz (PL)-Messungen an einem exemplarischen  $n$ -dotierten GaN/Al<sub>0,18</sub>Ga<sub>0,82</sub>N Übergitter durchgeführt. Die schnelle Komponente des nichtexponentiellen Zerfalls der PL wird maßgeblich durch den Einfang photogenerierter Ladungsträger in nichtstrahlende Rekombinationszentren beeinflusst. Durch Sättigung der Rekombinationszentren bei hohen Anregungsdichten erhöht sich die schnelle Zerfallszeit von 120 ps auf 300 ps. Die ultraschnellen Relaxationsprozesse der Ladungsträger, untersucht mittels spektral- und zeitaufgelöster Anrege-Abfrage-Spektroskopie, zeigen eine Einfangkinetik auf einer Zeitskala von 150 – 200 fs in Defektzustände nahe der Übergitterbandkante. Dieser Einfangkinetik folgt das Abkühlen der Ladungsträger, das sich bei Raumtemperatur auf eine Zeitskala von wenigen Pikosekunden und bei tiefen Temperaturen auf eine Zeitskala von 35 ps erstreckt.

Zur Verhinderung von Degradationseffekten bei hoher optischer Anregung wurde die Probe mit einer Siliziumnitridschicht beschichtet, wie sie auch zur Facettenpassivierung bei Halbleiterlasern zum Einsatz kommt. Die Charakterisierung mittels zeitaufgelöster PL zeigt ein stabiles optisches Langzeitverhalten bei gleichzeitiger Zunahme der nichtstrahlenden Rekombination über Defekte.

Die künstliche Periodizität der Übergitter bewirkt auch eine neue phononische Bandstruktur mit zusätzlichen Zuständen im Zentrum der Brillouin-Zone. Solche zonengefalteten Phononen können über Licht-Materie-Wechselwirkung angeregt und durch einen elektrischen Strom verstärkt werden, was eine potentielle Ultraschallquelle im THz-Bereich ermöglicht. Die Elektron-Phonon-Kopplung über die piezoelektrische Wechselwirkung könnte die Effizienz der Phononemission steigern. Der spektroskopische Vergleich zweier AlAs/GaAs-Übergitter, die jeweils in [100]- und [111]-Richtung gewachsen wurden, ermöglicht die gezielte Untersuchung der piezoelektrischen Wechselwirkung, da diese für kohärente zonengefaltete Phononen nur in der [111]-Probe existiert. Die Zerfallszeit der Amplituden kohärenter Phononen in der [100]-Probe und in der [111]-Probe mit einem Wellenvektor von  $q \neq 0$  ist unabhängig von der Anregungsdichte. Die Phononamplitude in der [111]-Probe mit  $q = 0$  hingegen fällt signifikant schneller ab. Kohärente Phononen verursachen in der [111]-Probe bei  $q = 0$  ein makroskopisches piezoelektrisches Feld, welches Ladungsträger beschleunigt, die durch Reibung die kohärenten Phononen dämpfen. Bei hohen Ladungsträgerdichten wird das induzierte piezoelektrische Feld abgeschirmt, was die zusätzliche Dämpfung hemmt und zu längeren Zerfallszeiten führt. Ob die starke Kopplung neben der Dämpfung auch zu einer effizienteren Verstärkung führt, kann nicht abschließend beantwortet werden.





In the context of this dissertation the ultrafast dynamics of elementary excitations in superlattices based on III-V-semiconductor structures are investigated. The focus is on the spectroscopic analysis of carrier kinetics in a gallium nitride (GaN)-based superlattice and on the piezoelectric electron-phonon-coupling of coherent zone-folded phonons in gallium arsenide (GaAs)-based superlattices.

Aluminum-containing GaN-based heterostructures in, e. g., UV-LEDs show a high density of structural defects, which reduce the efficiency of such optoelectronic devices. For a better understanding of defect-related carrier kinetics, a heavily *n*-doped GaN/Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N superlattice is studied with spectrally and temporally resolved photoluminescence (PL) experiments. The fast component of the non-exponential PL decay is predominantly controlled by a trapping process of carriers into non-radiative recombination centers. High excitation densities saturate these recombination centers, increasing the decay time of the fast process from 120 ps to 300 ps. The ultrafast carrier relaxation processes investigated with spectrally resolved pump-probe spectroscopy show a trapping kinetics into defect states near the conduction band minimum on a time scale of 150 – 200 fs. These defect states might be caused by the aluminum disorder in the barriers. The trapping kinetics are followed by carrier cooling on a few-picosecond time scale at room temperature and on a 35 ps time scale at low temperatures.

To prevent degradation effects at high optical loads, the sample was coated with silicon nitride, which is also used for the passivation of facets of diode lasers. Time-resolved PL experiments show a long-term stabilization with a concomitant increase of the density of non-radiative recombination centers.

The artificial periodicity of a superlattice creates a new phononic band structure with additional states in the center of the Brillouin zone. These zone-folded phonons can be excited coherently via light-matter-interaction and amplified by an electric current, which is a potential ultrasound source in the THz range. Electron-phonon coupling via the piezoelectric interaction might increase the efficiency of phonon emission. The comparison of the amplitude decay of coherent phonons in two GaAs/AlAs superlattices grown in [100] and [111] direction allows the investigation of piezoelectric interaction, as only the [111] superlattice exhibits the piezoelectric interaction. The amplitude decay of coherent phonons in the [100] sample and in the [111] sample with a wave vector of  $q \neq 0$  is independent of the excitation density. The amplitude of coherent phonons in the [111] sample with  $q = 0$  decays significantly faster. The deformation by these zone-folded longitudinal-acoustic phonons in the [111] sample causes a macroscopic piezoelectric field to which the photogenerated electron-hole plasma couples. Friction of the accelerated carriers provides the additional damping mechanism. High carrier densities screen the induced piezoelectric field, thus reducing the damping mechanism via the piezoelectric interaction. However, the question of whether the strong coupling leads to an increased phonon amplification despite strong damping cannot be answered at present.



<b>1. Einleitung</b>	<b>9</b>
<b>2. Physikalische Grundlagen</b>	<b>13</b>
2.1. Kristallstruktur der untersuchten Halbleiter . . . . .	13
2.1.1. Elastizitätstheorie . . . . .	13
2.1.2. Piezoelektrizität . . . . .	15
2.2. Phononische Eigenschaften . . . . .	16
2.2.1. Phononische Bandstruktur im Volumenmaterial . . . . .	16
2.2.2. Phononen in Übergittern . . . . .	19
2.3. Elektronische Eigenschaften . . . . .	21
2.3.1. Elektronische Bandstruktur . . . . .	21
2.3.2. Bandlücke von ternären Mischkristallen . . . . .	22
2.3.3. Heterostrukturen und Übergitter . . . . .	23
2.4. Wechselwirkungsmechanismen . . . . .	28
2.4.1. Elektron-Phonon-Wechselwirkung . . . . .	28
2.4.2. Phonon-Phonon-Wechselwirkung . . . . .	30
2.4.3. Licht-Materie-Wechselwirkung . . . . .	31
<b>3. Experimentelle Methoden und Proben</b>	<b>37</b>
3.1. Verwendete Probenstrukturen . . . . .	37
3.2. Messaufbauten zur Untersuchung der Photolumineszenz . . . . .	39
3.2.1. Zeitaufgelöste Messung der Photolumineszenz . . . . .	39
3.2.2. Photolumineszenzmessung mit gepulster Anregung und zeitinte-	
grierter Detektion . . . . .	42
3.2.3. Ortsaufgelöste konfokale Spektroskopie . . . . .	43
3.2.4. Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie . . . . .	43
3.3. Messaufbauten zur Untersuchung ultraschneller Prozesse . . . . .	45
3.3.1. Anrege-Abfrage-Experimente im sichtbaren Bereich mit spektraler	
Auflösung . . . . .	45
3.3.2. Anrege-Abfrage-Experimente im IR-Bereich . . . . .	47
<b>4. Ultraschnelle Ladungsträgerkinetik in AlGaIn/GaN Übergittern</b>	<b>49</b>
4.1. Spektroskopische Analyse des GaN-basierten Übergitters . . . . .	50
4.1.1. Charakterisierung des GaN-basierten Übergitters . . . . .	50
4.1.2. Absorption des Übergitters . . . . .	61
4.1.3. Untersuchung der strukturellen Stabilität . . . . .	62
4.2. Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik . . . . .	66
4.2.1. Experimentelle Ergebnisse . . . . .	66
4.2.2. Diskussion der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik . . . . .	67
<b>5. Kohärente Dynamik zonengefalteter Phononen in Übergitterstrukturen</b>	<b>79</b>
5.1. Spektroskopische Analysen an GaAs-basierten Übergittern . . . . .	84

5.2. Ultraschnelle Dynamik zonengefalteter Phononen in GaAs-basierten Über- gittern . . . . .	86
<b>6. Zusammenfassung</b>	<b>97</b>
<b>A. Anhang</b>	<b>101</b>
A.1. Abschätzung der Reflektivitätsänderung . . . . .	101
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>103</b>

III-V-Halbleiter sind Verbindungen aus Elementen der dritten (Al, Ga, In) und der fünften Hauptgruppe des Periodensystems (N, P, As, Sb). Die Bandlücken dieser Halbleitermaterialien erstrecken sich vom infraroten bis in den ultravioletten Spektralbereich. Da sie somit den sichtbaren Spektralbereich abdecken, sind sie prädestiniert für Anwendungen in der Beleuchtung.

Die Vorhersage, dass Galliumarsenid (GaAs) ein Halbleiter ist, stammt von Welker et al. [1, 2] aus dem Jahre 1952. Bereits wenige Jahre später wurde das erste GaAs Volumenmaterial gewachsen [3]. Erste Ergebnisse zu GaAs-basierten Laserdioden wurden im Jahr 1962 veröffentlicht und haben seither den Bereich der Optoelektronik revolutioniert [4–8]. Die Verwendung von Aluminium und Phosphor als Substituenten hat erste LEDs im grünen und roten Spektralbereich ermöglicht. Die erste Beobachtung der blauen Elektrolumineszenz von GaN im Jahr 1971 [9] hat die Möglichkeit aufgezeigt, dieses Material für eine Erweiterung in den blauen Spektralbereich zu nutzen. Anfang der 90er folgten die ersten Nitrid-basierten LEDs [10, 11] und im Jahre 1996 erste Laserdioden [12, 13].

Moderne Wachstumstechniken wie beispielsweise die Molekularstrahlepitaxie oder die metallorganische chemische Gasphasenepitaxie ermöglichen durch das gezielte Wachsen einzelner Atomlagen die Herstellung von Heterostrukturen und quasi-zweidimensionalen Strukturen. Diese stellen nicht nur die Basis der bereits erwähnten Leucht- und Laserdioden dar, sondern sind auch für elektronische Bauelemente wie Heteroübergangs-Bipolartransistoren und HEMTs<sup>1</sup> relevant. Das epitaktische Wachsen ermöglicht auch die Herstellung mehrerer alternierender Schichten aus zwei unterschiedlichen Materialien. In Wachstumsrichtung, d. h. senkrecht zu den jeweiligen Schichten, entsteht so ein künstlicher Kristall, der über eine neue Gitterkonstante  $d_{\text{SL}}$  größer als diejenige des Halbleiterkristalls verfügt. Die zusätzliche Periodizität im Kristall führt zu einer Mini-Brillouin-Zone, die sich von  $-\pi/d_{\text{SL}}$  bis  $\pi/d_{\text{SL}}$  erstreckt.

Von einer derartigen Übergitterstruktur auf GaAs-Basis wurde zuerst von Esaki und Tsu im Jahr 1970 berichtet [14]. Sind die Schichtdicken des Übergitters in der Größenordnung der De-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger, so bewirkt der periodische Potentialverlauf Quanteneffekte wie das Ausbilden elektronischer Minibänder senkrecht zu den jeweiligen Schichten. Ferner modifiziert die künstliche Gitterperiodizität nicht nur die elektronischen Eigenschaften, sondern kann auch zu einer phononischen und photonischen Bandstruktur führen. Die Abmessung der Mini-Brillouin-Zone und somit die energetischen Positionen der jeweiligen Bandstruktur können durch die Parameter des Übergitters variiert und an die jeweiligen Anforderungen angepasst werden. Dies ist eine entscheidende Eigenschaft,

---

<sup>1</sup>engl: *HEMT = high-electron-mobility transistor*

die Quantenkaskadenlaser [15], Infrarotdetektoren mit einer definierten spektralen Empfindlichkeit [16, 17] oder auch Bragg-Spiegel in Laserdioden [18] ermöglicht.

Durch das Falten der optischen und akustischen Phononenzweige in die Mini-Brillouin-Zone entstehen zusätzliche phononische Zustände im Zentrum der Mini-Brillouin-Zone, die über einen ultrakurzen Laserpuls kohärent angeregt werden können. Da ihre Frequenzen den Giga- und Terahertzbereich abdecken können, stellen Übergitter eine potentielle Ultraschallquelle in einem viel höheren Frequenzbereich dar, als mit herkömmlichen Ultraschallquellen wie Piezoelementen erreicht werden kann [19]. GaN-basierte Übergitter verfügen über piezoelektrische Eigenschaften, die eine effizientere Verstärkung kohärenter Phononen über die zusätzliche piezoelektrische Elektron-Phonon-Wechselwirkung ermöglichen könnten und deshalb für elektrophonische Anwendung äußerst interessant sind.

Die Dynamik der Elementaranregungen in solchen Halbleitern und Übergitterstrukturen geschieht auf der Femto- bis Pikosekundenskala und umfasst die Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander, zwischen Ladungsträgern und Gitteratomen, sowie zwischen Gitteratomen untereinander, d. h. Phononen [20]. Das physikalische Verständnis der relevanten Prozesse in III-V-Halbleiterstrukturen basiert hierbei hauptsächlich auf Untersuchungen an GaAs-basierten Proben [21]. Verglichen mit GaAs-basierten Strukturen haben III-Nitride eine höhere Versetzungsdichte [22, 23], die hauptsächlich auf einer größeren Fehlanpassung der Gitterkonstante beim epitaktischen Wachsen auf Fremdsubstrate [24] beruht. Dies führt auch zu einer größeren Rauigkeit der Grenzflächen in GaN-basierten Heterostrukturen [25]. Diese materialbedingten Gitterfehler bewirken eine Veränderung der elektronischen Minibandstruktur in Übergittern, sowie zusätzliche Zustände in der Bandlücke, deren Einfluss auf die ultraschnelle Dynamik noch nicht hinreichend untersucht wurde und dem sich diese Dissertation widmet.

In der vorliegenden Arbeit wird zum einen die Ladungsträgerdynamik auf der Piko- und Femtosekundenskala in einem AlGaIn/GaN-Übergitter, zum anderen der Einfluss der piezoelektrischen Elektron-Phonon-Wechselwirkung auf zonengefaltete Phononen untersucht. Für den letzteren Punkt wird auf zwei GaAs-basierte Übergitter zurückgegriffen, welche jeweils in [100]- und [111]-Richtung gewachsen wurden. Da eine durch longitudinalakustische Phononen induzierte Verspannung in [100]-Richtung im Gegensatz zur [111]-Richtung kein piezoelektrisches Feld bewirkt, ermöglicht der Vergleich dieser beiden Proben eine gezielte Untersuchung der piezoelektrischen Wechselwirkung.

Zur Beobachtung und Quantifizierung solcher Dynamiken wird in dieser Dissertation auf spektroskopische Techniken zurückgegriffen. Die optische Anrege-Abfrage-Spektroskopie ermöglicht eine zeitliche Auflösung physikalischer Prozesse im Femtosekundenbereich. Hierbei erzeugt ein ultrakurzer Laserimpuls eine Anregung im Übergitter, deren zeitlicher Verlauf von einem verzögerten Puls abgefragt wird [21]. Vervollständigt werden die Untersuchungen mit der Charakterisierung der Photolumineszenz (PL), die mithilfe einer Streak-Kamera zeitlich analysiert wird.

Zuerst werden in **Kapitel 2** die physikalischen Grundlagen der Kristallstrukturen, ihrer phononischen und elektronischen Eigenschaften, sowie deren Modifizierung in Übergittern erläutert. Zusätzlich liegt ein besonderes Augenmerk auf den relevanten Wechselwirkungsmechanismen zwischen Elektronen und Phononen. Diese Punkte werden am Beispiel von GaN und GaAs behandelt, da diese die relevanten Materialien in dieser Arbeit sind.

**Kapitel 3** erläutert die experimentellen Details der PL-Messungen und der Anrege-Abfrage-Spektroskopie.

In **Kapitel 4** folgt eine Untersuchung der Ladungsträgerkinetik in einem AlGaIn/GaN-Übergitter. Zuerst werden zeitaufgelöste PL-Experimente auf der Piko- bis Nanosekundenskala behandelt, danach folgen spektral aufgelöste Anrege-Abfrage-Experimente im Femtosekundenbereich.

**Kapitel 5** beschäftigt sich mit der ultraschnellen Gitterdynamik kohärenter Phononen in Übergittern. Im Zentrum steht hierbei die Untersuchung der piezoelektrischen Elektron-Phonon-Wechselwirkung, dessen Einfluss durch den Vergleich zweier GaAs-basierter Strukturen quantifiziert wird.

Zum Schluss werden in **Kapitel 6** die Ergebnisse dieser Dissertation zusammengefasst.





### 2.1. Kristallstruktur der untersuchten Halbleiter

Der folgende Abschnitt behandelt die Kristallstruktur der untersuchten III-Nitrid- und III-Arsenid-Halbleitermaterialien, sowie ihre elastischen und piezoelektrischen Eigenschaften.

Galliumarsenid (GaAs) und Aluminiumarsenid (AlAs) kristallisieren in der Zinkblende-Struktur. Sie besteht aus zwei kubisch flächenzentrierten Untergittern jeweils aus Gallium- und Arsenatomen, die gegeneinander um ein Viertel der Raumdiagonalen der Elementarzelle verschoben sind, siehe Abbildung 2.1 (a). Durch verschiedene Elektronegativitäten (1,81 bei Gallium und 2,18 bei Arsen [26]) ist die Bindung nicht rein kovalent, sondern hat auch einen ionischen Anteil. In Kombination mit dem Fehlen einer Inversionssymmetrie in der Zinkblende-Struktur führt dies zu piezoelektrischen Eigenschaften, auf die in Abschnitt 2.1.2 eingegangen wird.

Die stabile Kristallstruktur von Galliumnitrid (GaN), Aluminiumnitrid (AlN) und Indiumnitrid (InN) ist die Wurtzit-Struktur. Es handelt sich hierbei um zwei hexagonale Gitter mit je einer Atomart, die entlang ihrer  $c$ -Achse um  $5/8 c$  verschoben sind, siehe Abbildung 2.1 (b). Die mit gelben Linien angedeutete primitive Zelle enthält zwei Gallium- und zwei Stickstoffatome.

Da Stickstoff eine deutlich höhere Elektronegativität (3,04 [26]) als Arsen hat, ist in GaN der ionische Charakter der Bindungen ausgeprägter als in GaAs. Zusätzlich erlaubt die geringere Symmetrie der Wurtzit-Struktur das Vorhandensein einer spontanen elektrischen Polarisation [27].

Die Materialparameter für GaAs und für GaN sind in der Tabelle 2.1 aufgelistet.

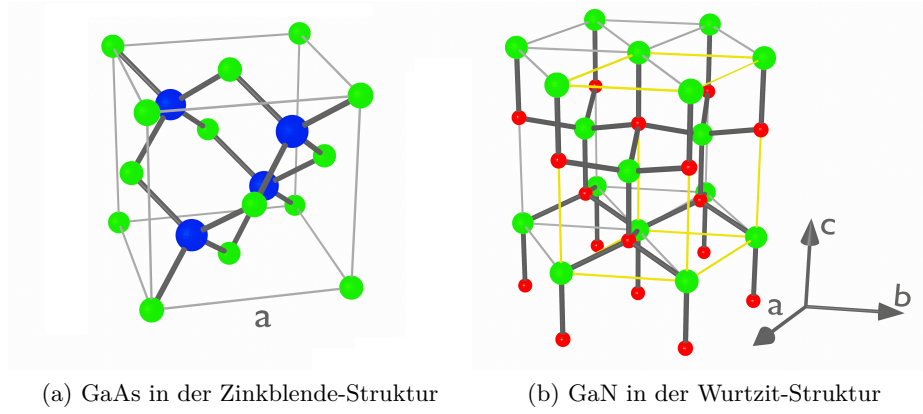
#### 2.1.1. Elastizitätstheorie

Eine von außen angelegte Kraft bewirkt eine Verformung des Kristalls, sodass eine Gitterposition mit den ursprünglichen kartesischen Koordinaten  $\mathbf{r} = \{r_x, r_y, r_z\}$  eine neue um den Auslenkungsvektor  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$  verschobene Gleichgewichtsposition  $\mathbf{r}'$  einnimmt:

$$\mathbf{r}' = \mathbf{r} + \mathbf{u}(\mathbf{r}). \quad (2.1)$$

Der Zustand des Kristalls bei einer Verformung kann durch den antisymmetrischen Rotationstensor und den symmetrischen Verzerrungstensor  $\eta_{kl}$  beschrieben werden. Für den letzteren gilt mit den Indizes  $x, y, z$  [28]:

$$\eta_{kl} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k}{\partial r_l} + \frac{\partial u_l}{\partial r_k} \right). \quad (2.2)$$



Abbildungung 2.1.: GaAs in der Zinkblende-Struktur und GaN in der Wurtzit-Struktur. Die Galliumatome sind grün, Arsenatome blau und Stickstoffatome rot dargestellt. Die primitive Zelle der hexagonalen Wurtzit-Struktur in (b) ist gelb hervorgehoben.

Die Diagonalelemente  $\eta_{kk}$  beschreiben die Dehnung und die Nichtdiagonalelemente  $\eta_{kl}$  mit  $k \neq l$  die Scherung eines Volumenelements. Bei kleinen Verzerrungen, d. h. im Geltungsbereich des Hookeschen Gesetzes, ist der Verzerrungstensor mit dem Spannungstensor  $\sigma_{ij}$  über den Elastizitätstensor  $C_{ijkl}$  verknüpft [28]:

$$\sigma_{ij} = \sum_{kl} C_{ijkl} \eta_{kl}. \quad (2.3)$$

Es wird hierbei über die drei Raumrichtungen  $x$ ,  $y$  und  $z$  summiert. Die Diagonalelemente des Spannungstensors  $\sigma_{ii}$  beschreiben auch hier die Kräfte, die senkrecht auf die Flächen eines Volumenelements angreifen. Die Nichtdiagonalelemente  $\sigma_{ij}$  mit  $i \neq j$  stehen für die entsprechenden Scherkräfte.

Da sowohl der Verzerrungstensor als auch der Dehnungstensor symmetrisch sind, d. h.  $\eta_{kl} = \eta_{lk}$  und  $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$ , beinhalten diese Tensoren nur maximal sechs unabhängige Einträge. Dies reduziert die maximalen unabhängigen Einträge des Elastizitätstensors von 81 auf 36 und aufgrund der Invarianz gegen Vertauschung  $ij \leftrightarrow kl$  weiter auf 21. Die Kristallsymmetrie kann die Anzahl unabhängiger Einträge weiter reduzieren. So existieren in kubischen Kristallen, wie in denjenigen der Zinkblende-Struktur, nur drei unabhängige Komponenten. In der verkürzten Voigt-Notation, d. h. mit dem Indexwechsel  $xx \rightarrow 1$ ,  $yy \rightarrow 2$ ,  $zz \rightarrow 3$ ,  $yz \rightarrow 4$ ,  $xz \rightarrow 5$ ,  $xy \rightarrow 6$ , kann der Elastizitätstensor  $C_{mn}$  als eine  $6 \times 6$  Matrix dargestellt werden [29]. Für Gleichung (2.3) ergibt sich somit:

$$\begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} = C_{mn} \cdot \begin{pmatrix} \eta_1 \\ \eta_2 \\ \eta_3 \\ \eta_4 \\ \eta_5 \\ \eta_6 \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad C_{mn} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix}. \quad (2.4)$$

In der hexagonalen Wurtzit-Struktur wählt man die  $x$ -Achse entlang  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$ , die  $y$ -Achse entlang  $\mathbf{a} + \mathbf{b}$  und die  $z$ -Achse entlang  $\mathbf{c}$ , vgl. Abbildung 2.1 (b). Der Elastizitätstensor

dieser Struktur hat fünf unabhängige Einträge [30]:

$$C_{mn} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & (C_{11} - C_{12})/2 \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Die Literaturwerte für GaAs und GaN sind in der Tabelle 2.1 aufgelistet.

### 2.1.2. Piezoelektrizität

In nicht-zentrosymmetrischen Kristallen wie die in der Zinkblende- und der Wurtzit-Struktur kann eine mechanische Spannung  $\sigma_{jk}$ , bzw. die daraus resultierende Verzerrung  $\eta_{jk}$  eine elektrische Polarisation  $P_i$  hervorrufen. Allgemein gilt [28]:

$$\Delta P_i = \sum_{jk} e_{ijk} \eta_{jk} \quad \text{oder} \quad \Delta P_i = \sum_{jk} d_{ijk} \sigma_{jk}, \quad (2.6)$$

wobei der Tensor  $e_{ijk}$ , bzw.  $d_{ijk}$  den linearen piezoelektrischen Effekt beschreibt. Entsprechend Gleichung (2.3) können beide piezoelektrischen Tensoren über  $\mathbf{e} = \mathbf{C} \cdot \mathbf{d}$  verknüpft werden. Der piezoelektrische Tensor  $e_{ijk}$  der Zinkblende-Struktur lautet in der Voigt-Notation [29]:

$$e_{mn} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & e_{14} \end{pmatrix}. \quad (2.7)$$

Verzerrungen bewirken nur entlang bestimmter Achsen eine elektrische Polarisation. Beispielsweise sorgt eine longitudinale Verzerrung entlang der [111]-Achse für eine Polarisation  $\Delta P = e_{14} \cdot (\eta_4 + \eta_5 + \eta_6)$ , die in diesem Fall in [111]-Richtung zeigt. Eine longitudinale Verzerrung in [100]-Richtung bewirkt hingegen keine Polarisation. Auf beide Achsen wird in der Diskussion im Kapitel 5 eingegangen, weshalb sie an dieser Stelle erwähnt werden.

Der piezoelektrische Tensor der Wurtzit-Struktur hat drei unabhängige Einträge [31,32]:

$$e_{mn} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.8)$$

Eine longitudinale Verzerrung in  $c$ -Richtung ruft eine Polarisation  $\Delta P = e_{33} \cdot \eta_3$  hervor. In der folgenden Tabelle sind Literaturwerte für die piezoelektrischen Eigenschaften von GaAs und GaN aufgelistet.

Parameter	GaAs Zinkblende-Struktur	GaN Wurtzit-Struktur
Gitterkonstanten	$a = 5,65 \text{ \AA}$ [33]	$a = b = 3,19 \text{ \AA}$ [34] $c = 5,19 \text{ \AA}$ [34]
Elastische Konstanten ( $10^6 \text{ N/cm}^2$ )	$C_{11} = 11,88$ [35] $C_{12} = 5,38$ [35] $C_{44} = 5,94$ [35]	$C_{11} = 39,0$ [36] $C_{12} = 14,5$ [36] $C_{13} = 10,6$ [36] $C_{33} = 39,8$ [36] $C_{44} = 10,5$ [36]
Piezoelektrische Konstanten ( $\text{C/m}^{-2}$ )	$e_{14} = 0,16$ [37]	$e_{13} = 0,10$ [31] $e_{33} = 0,17$ [31] $e_{15} = 0,29$ [31]
Dichte	$\rho = 5,31 \text{ g/cm}^3$ [38]	$\rho = 6,11 \text{ g/cm}^3$ [39]

Tabelle 2.1.: Übersicht über die Literaturwerte für GaAs in der Zinkblende-Struktur und GaN in der Wurtzit-Struktur.

## 2.2. Phononische Eigenschaften

Der folgende Abschnitt behandelt die phononischen Eigenschaften der untersuchten Materialien. Dabei wird zuerst auf die phononischen Bandstruktur im Volumenmaterial und anschließend auf ihre Modifizierung in Übergittern eingegangen.

### 2.2.1. Phononische Bandstruktur im Volumenmaterial

In Abbildung 2.2 ist die phononische Bandstruktur von GaAs und in Abbildung 2.3 die von GaN dargestellt. Sowohl GaN als auch GaAs verfügen über vier Atome pro Elementarzelle und daraus resultierend drei akustische und neun optische Zweige, die sich jeweils entlang bestimmter Kristallachsen in rein transversale Wellen und rein longitudinale Wellen einteilen lassen.

Die Energie der longitudinal-optischen (LO) Phononen ist in der Nähe des  $\Gamma$ -Punkts näherungsweise unabhängig vom  $q$ -Vektor und beträgt 36 meV in GaAs [40] und 91 meV in GaN [41]. Akustische Phononen zeigen im Bereich nahe des  $\Gamma$ -Punkts eine lineare Dispersionsrelation, deren Steigung der Schallgeschwindigkeit entspricht.

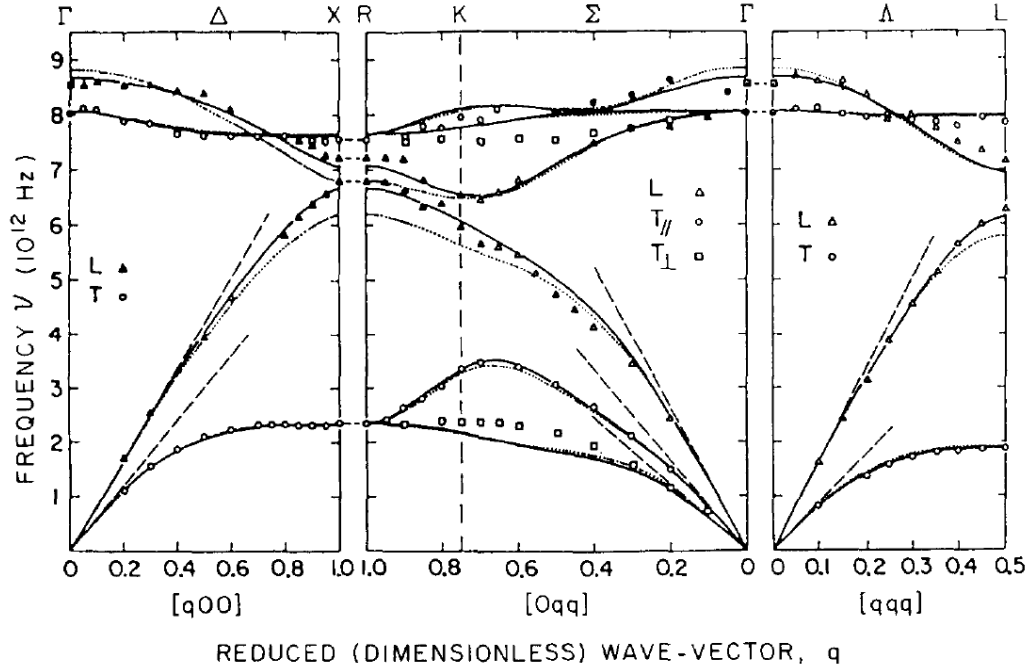


Abbildung 2.2.: Phononische Bandstruktur von GaAs gemessen mittels inelastischer Neutronenstreuung bei Raumtemperatur. Grafik entnommen aus [42] mit Genehmigung von AIP Publishing.

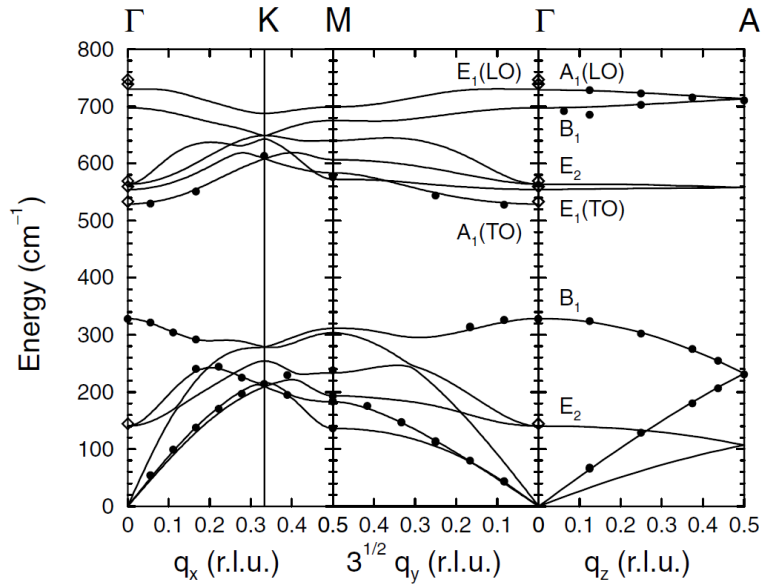


Abbildung 2.3.: Phononische Bandstruktur von GaN in der Wurtzit-Struktur. Die schwarzen Punkte wurden mittels inelastischer Röntgenstreuung gemessen. Genehmigter Nachdruck der Grafik aus: Ruf et al., Physical Review Letters **86**, 906 (2001) [43]. Copyright (2021) der American Physical Society.

### Schallgeschwindigkeiten in der Näherung der Kontinuumsmechanik

Die Ausbreitungsgeschwindigkeit akustischer Phononen kann in der Näherung der Kontinuumsmechanik berechnet werden. Diese Näherung gilt, wenn sich die Auslenkung benachbarter Atome nicht stark unterscheidet, d. h. für akustische Phononen bei  $q \ll \pi/d$ . Im Folgenden wird analog zur Elastizitätstheorie in Abschnitt 2.1.1 ein dreidimensionaler Kristall betrachtet, in dem das Vektorfeld  $\mathbf{u}(\mathbf{r})$  die atomare Verschiebung an einem bestimmten Punkt  $\mathbf{r}$  im Kristall beschreibt. Für ein akustisches Phonon gilt die Wellengleichung [28]:

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2}. \quad (2.9)$$

Auch hier entsprechen die Indizes wieder den drei Raumrichtungen  $x, y, z$ . Mit dem Spannungstensor aus Gleichung (2.3) erhält man:

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = \sum_{kl} C_{ijkl} \frac{\partial^2 u_k}{\partial x_j \partial x_l} = \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2}. \quad (2.10)$$

Der Ansatz einer ebenen Welle  $u_i(r_i, t) = u_{i,0} \exp(i(q_i \cdot r_i - \Omega t))$ , wobei  $q_i$  der Wellenvektor und  $\Omega$  die Kreisfrequenz des Phonons ist, führt zu [28]:

$$\rho \Omega^2 u_i - \sum_{jkl} C_{ijkl} q_j q_l u_k(k_k, t) = 0. \quad (2.11)$$

Mit den folgenden Vereinfachungen  $\mathbf{q} = |\mathbf{q}|\mathbf{g}$  mit  $\mathbf{g} = g_i \hat{\mathbf{e}}_i$ , wobei  $\hat{\mathbf{e}}$  der Einheitsvektor ist, und  $v = \Omega/|\mathbf{q}|$  ergibt sich im ersten Term die Propagationsgeschwindigkeit  $v$  [28]:

$$\left( \rho v^2 \delta_{ik} - \sum_{jl} C_{ijkl} g_j g_l \right) u_k = 0, \quad (2.12)$$

wobei  $\delta_{ik}$  das Kronecker-Delta ist. Die Eigenwerte der sogenannten Christoffel-Matrix  $(\rho v^2 \delta_{ik} - \sum_{jl} C_{ijkl} g_j g_l)$  in Gleichung (2.12) können bis zu drei verschiedene Werte für  $v$  pro Propagationsrichtung  $\mathbf{g}$  ergeben. Die jeweiligen Eigenvektoren  $u_k$  geben die Auslenkungsrichtung der Schwingung an. Da es sich um die Ausbreitung von Schallwellen handelt, deckt sich die maximale Anzahl möglicher Eigenwerte  $\rho v^2$  pro Propagationsrichtung mit der Anzahl der möglichen akustischen Moden.

Wenn entlang bestimmter Kristallachsen die Propagationsrichtung mit einem Eigenvektor übereinstimmt, handelt es sich bei der entsprechenden Schwingung um eine longitudinal-akustische (LA) Welle. Da die drei Eigenvektoren senkrecht auf einander stehen, stellen in diesem Fall die zwei anderen Eigenvektoren transversal-akustische (TA) Wellen dar.

Im weiteren Verlauf dieser Dissertation wird die Propagationsgeschwindigkeit von LA-Phononen in GaAs entlang der [100]- und [111]-Richtung benötigt. Für sie gilt mit den Elastizitätskonstanten aus Tabelle 2.1 [30]:

$$v_{[100]} = \sqrt{\frac{C_{11}}{\rho}} = 4,73 \times 10^5 \text{ cm/s}, \quad (2.13)$$

$$v_{[111]} = \sqrt{\frac{C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44}}{3\rho}} = 5,4 \times 10^5 \text{ cm/s}. \quad (2.14)$$

Auch die Propagationsgeschwindigkeit von LA-Phononen in [0001]-Richtung in GaN ist in der weiteren Diskussion relevant und soll an dieser Stelle kurz erwähnt werden [30]:

$$v_{[0001]} = \sqrt{\frac{C_{33}}{\rho}} = 8,07 \times 10^5 \text{ cm/s.} \quad (2.15)$$

### 2.2.2. Phononen in Übergittern

Betrachten wir nun eine Abfolge mehrerer alternierender dünner Schichten der Materialien  $A$  und  $B$  mit den Dicken  $d_A$  und  $d_B$ . Wenn sich diese Materialien in mindestens einem Materialparameter unterscheiden, entsteht entlang der  $z$ -Achse ein neuer künstlicher Kristall mit einer Gitterkonstante von  $d_{\text{SL}} = d_A + d_B$ , schematisch dargestellt in Abbildung 2.4 (a). Ein solches Übergitter kann eine Modifizierung der phononischen Bandstruktur bewirken, wenn der alternierende Materialparameter die Dichte  $\rho$  oder der Elastizitätstensor  $\mathbf{C}$  ist, da sich aus diesen Größen die Dispersionsrelation der akustischen Phononen ergibt.

Sowohl akustische als auch optische Phononen werden durch die künstliche Periodizität in Wachstumsrichtung in die neue Mini-Brillouin-Zone gefaltet, die sich von  $-\pi/d_{\text{SL}}$  bis  $\pi/d_{\text{SL}}$  erstreckt. Für die Diskussion dieser zonengefalteten Phononen werden nun LA-Phononen in  $z$ -Richtung betrachtet. Anhand Gleichung (2.12) lässt sich die Propagationsgeschwindigkeit für LA-Phononen berechnen, die in den jeweiligen Materialien  $v_A$  und  $v_B$  seien, siehe Abbildung 2.4 (a). Im Ansatz von Rytov [44] sind die Schallwellen in den jeweiligen Materialien eine Linearkombination zweier ebener Wellen. An jeder Grenzschicht  $z = z_i$  zwischen Material  $A$  und  $B$  müssen sowohl die Auslenkung  $u$  der Atome als auch die Spannung stetig sein. Daraus ergeben sich folgende Randbedingungen [44, 45]:

$$u_A(z_i) = u_B(z_i), \quad (2.16)$$

$$C_A \frac{\partial}{\partial z} u_A(z) \Big|_{z=z_i} = C_B \frac{\partial}{\partial z} u_B(z) \Big|_{z=z_i}. \quad (2.17)$$

Des Weiteren muss der Ansatz dem Bloch-Theorem genügen, d. h. es gilt:  $u(z + d_{\text{SL}}) = u(z) \exp(iqd_{\text{SL}})$ . Daraus ergibt sich die Dispersionsrelation der phononischen Minibandstruktur [45]:

$$\cos(qd_{\text{SL}}) = \cos \left[ \Omega \left( \frac{d_A}{v_A} + \frac{d_B}{v_B} \right) \right] - \left( \frac{\alpha^2}{2} \right) \sin \left( \Omega \frac{d_A}{v_A} \right) \sin \left( \Omega \frac{d_B}{v_B} \right), \quad (2.18)$$

mit dem Parameter  $\alpha$ , für den gilt:

$$\alpha = \frac{\rho_B v_B - \rho_A v_A}{\sqrt{\rho_B v_B \rho_A v_A}}. \quad (2.19)$$

Das Ergebnis aus Gleichung (2.18) ist als rote Linie in der Abbildung 2.4 (b) dargestellt. Es entsteht eine neue phononische Bandstruktur in Wachstumsrichtung, deren Lücke im Zentrum und an den Rändern der Mini-Brillouin-Zone durch den zweiten Term in Gleichung (2.18) bestimmt wird. Der erste Term entspricht der geometrischen Lösung ohne die Aufhebung der Entartung im Zentrum und an den Rändern der Mini-Brillouin-Zone. Ihr

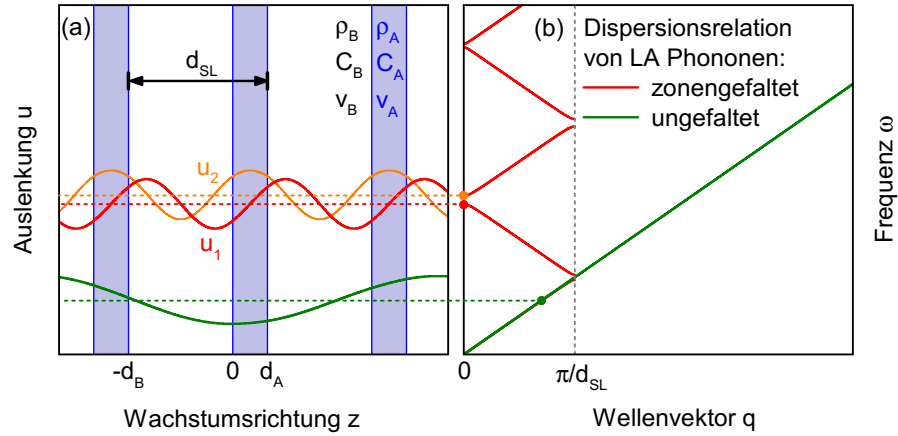


Abbildung 2.4.: (a) Auslenkung von LA Phononen in einem Übergitter bestehend aus Schichten der Dicken  $d_A$  und  $d_B$ . (b) Dispersionsrelation von zonengefalteten LA Phononen in Übergittern (rote Kurve) und in Volumenmaterial (grüne Linie). Die Frequenz und der Wellenvektor der drei Phononen in (a) gehören zu den gleichfarbigen Punkten in (b). Die rote Linie in (a) entspricht somit zonengefalteten Phononen bei  $q=0$  am unteren Rand der phononischen Bandlücke, die orangefarbene derjenigen bei  $q=0$  am oberen Rand der phononischen Bandlücke.

wird eine mittlere Propagationsgeschwindigkeit von  $v^{-1} = d_A/(d_{SL}v_A) + d_B/(d_{SL}v_B)$  zu Grunde gelegt, was der mittleren Propagationsdauer durch eine Periode entspricht [45]. Die Schallgeschwindigkeit wurde auch für den akustischen Zweig eines Volumenhalbleiters (grüne Kurve in Abbildung 2.4 (b)) verwendet. In Abbildung 2.4 (a) sind zusätzlich die atomaren Auslenkungen dreier Moden zu einem bestimmten Zeitpunkt dargestellt. Die grüne Kurve ist hierbei eine akustische Mode, welche sowohl im Volumenmaterial als auch im Übergitter existiert. Die roten und orangenen Kurven entsprechen zonengefalteten akustischen Moden bei  $q = 0$ , die nur im Übergitter als stehende Welle existieren können.



## 2.3. Elektronische Eigenschaften

### 2.3.1. Elektronische Bandstruktur

Allgemein werden Materialien als Halbleiter bezeichnet, deren spezifischer Widerstand zwischen  $10^{-2}$  und  $10^9 \Omega \text{ cm}$  liegt [26,30] und die somit sowohl als Leiter als auch als Nichtleiter betrachtet werden können. Die elektrische Leitfähigkeit kann jedoch beim Wachstumsprozess durch das Einbringen von Fremdatomen mit einer anderen Wertigkeit modifiziert werden. Wenn in GaAs und GaN Galliumatome durch Silizium ersetzt werden, ergibt sich eine  $n$ -Dotierung, d. h. die Siliziumatome wirken als Donatoren [46, 47]. Das Einbringen von Akzeptoren führt zu einer  $p$ -Dotierung. Die entstehenden Leerstellen im Valenzband werden als Quasiteilchen analog zu Elektronen behandelt und als Löcher bezeichnet.

Die Bandstruktur stellt die Beziehung zwischen Energie und Wellenvektor der Elektronen und Löcher dar. Die Bandlücke  $E^g$  beschreibt bei Halbleitern und Isolatoren den energetischen Abstand zwischen dem bei  $T = 0 \text{ K}$  höchsten besetzten und niedrigsten unbesetzten Band. Halbleiter und Isolatoren unterscheiden sich durch die Größe der Bandlücke, wobei häufig eine Grenze von 4 eV gewählt wird [48]. Diese obere Grenze zu Isolatoren ist eher ein vager Richtwert, da auch Materialien mit größerer Bandlücke wie Aluminiumnitrid zu den Halbleitern gezählt werden [49]. In Abbildung 2.5 ist die elektronische Bandstruktur von GaAs und in Abbildung 2.6 (a) für die von GaN dargestellt. Beide Materialien sind direkte Halbleiter, d. h. das Valenzbandmaximum und das Leitungsbandminimum befinden sich am gleichen Ort im  $k$ -Raum. Sowohl in GaAs als auch in GaN besteht das Leitungsband hauptsächlich aus  $s$ -artigen und das Valenzband hauptsächlich aus  $p$ -artigen Atomorbitalen.

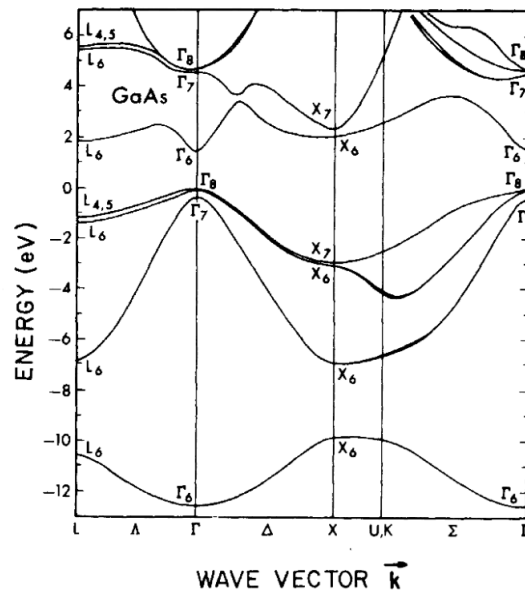
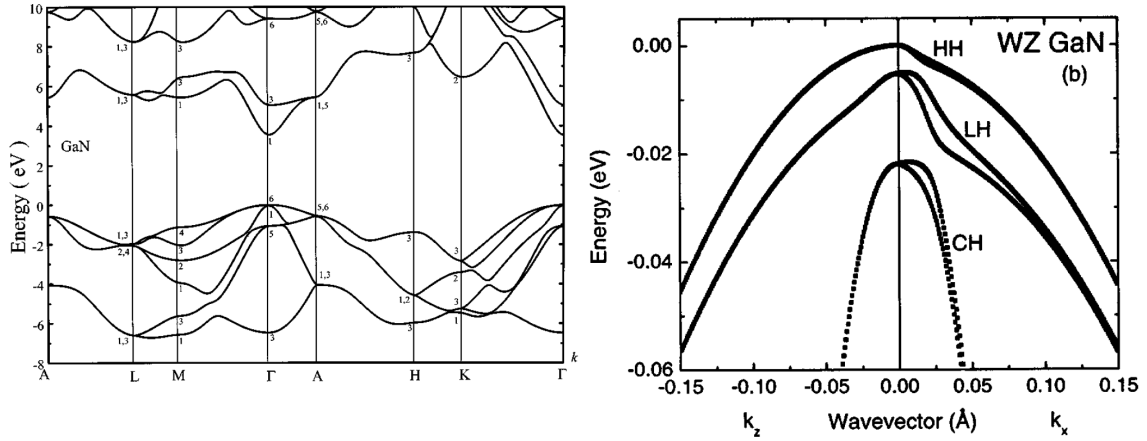


Abbildung 2.5.: Elektronische Bandstruktur von GaAs nach Pseudopotentialrechnungen. Genehmigter Nachdruck der Grafik aus: Chelikowsky et al., Physical Review B **14**, 556 (1976) [50]. Copyright (2021) der American Physical Society.



(a) Bandstruktur ermittelt mit Pseudopotentialrechnungen. Grafik entnommen aus [51] mit Genehmigung von AIP Publishing. (b) Valenzbänder am  $\Gamma$ -Punkt in  $z$ -Richtung und parallel zur  $z$ -Richtung. Grafik entnommen aus [36] mit Genehmigung von AIP Publishing.

Abbildung 2.6.: Elektronische Bandstruktur von GaN in der Wurtzit-Struktur.

An Punkten in der Brillouin-Zone mit hoher Symmetrie, wie dem  $\Gamma$ -Punkt ( $\mathbf{k} = 0$ ), kann die Bandstruktur durch eine Parabel genähert werden, deren Krümmung durch die reziproke Masse der Elektronen ( $1/m_e^*$ ), bzw. der Löcher ( $1/m_h^*$ ) bestimmt wird. Sie kann richtungsabhängig sein und ist somit eine tensorielle Größe [49]:

$$\left(\frac{1}{m_e^*}\right)_{ij} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k_i \partial k_j}, \quad (2.20)$$

$$\left(\frac{1}{m_h^*}\right)_{ij} = -\frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E}{\partial k_i \partial k_j}, \quad \text{mit } i, j = x, y, z. \quad (2.21)$$

Die prinzipiell mögliche Richtungsabhängigkeit der effektiven Masse der Elektronen wird im Folgenden vernachlässigt. In GaAs liegen am  $\Gamma$ -Punkt zwei entartete Valenzbandmaxima mit unterschiedlichen Krümmungen vor. Das Band mit der kleineren Krümmung wird als Schwerlochband mit den effektiven Massen  $m_{hh}^*$  ( $hh = \text{heavy holes}$ ) und das mit der größeren Krümmung als Leichtlochband mit  $m_{lh}^*$  ( $lh = \text{light holes}$ ) bezeichnet. Durch die Wechselwirkung des Spins eines Lochs mit seinem Bahndrehimpuls entsteht eine Aufspaltung des Energieniveaus, was sich in einem zusätzlichen Valenzband mit der effektiven Masse  $m_{so}^*$  ( $so = \text{spin-orbit coupling}$ ) äußert. In GaN in der Wurtzit-Struktur wird durch die Spin-Bahn-Kopplung sowie durch das Kristallfeld das Valenzband am  $\Gamma$ -Punkt in drei Äste aufgespalten, die in Abbildung 2.6 (b) HH, LH, und CH bezeichnet werden. In der Literatur werden diese auch häufig A-, B- und C-Band genannt. Sie verfügen jeweils über unterschiedliche effektive Massen in  $z$ -Richtung und senkrecht zur  $z$ -Richtung.

### 2.3.2. Bandlücke von ternären Mischkristallen

Sowohl in GaN als auch in GaAs lässt sich durch das Ersetzen der Galliumatome durch Indium- oder Aluminiumatome die Bandlücke modifizieren. In einem solchen Substitutionsmischkristall erhöht Aluminium die Bandlücke, Indium verringert sie. Für die Band-

lücke von  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  und  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  gilt mit dem relativen Anteil  $x$  der Komponente AlN oder InN [39]:

$$\begin{aligned} E_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}^g(x) &= x \cdot E_{\text{AlN}}^g + (1-x) \cdot E_{\text{GaN}}^g - b_{\text{AlGa}} \cdot x \cdot (1-x), \\ E_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}^g(x) &= x \cdot E_{\text{InN}}^g + (1-x) \cdot E_{\text{GaN}}^g - b_{\text{InGa}} \cdot x \cdot (1-x), \end{aligned}$$

mit  $E_{\text{GaN}}^g = 3,42 \text{ eV}$  [39],  $E_{\text{AlN}}^g = 6,2 \text{ eV}$  [52] und  $E_{\text{InN}}^g = 0,675 \text{ eV}$  [53]. Für die jeweiligen Bowing-Parameter  $b$  gilt  $b_{\text{AlGa}} = 1,0 \text{ eV}$  [54] und  $b_{\text{InGa}} = 1,65 \text{ eV}$  [53], wobei die Literaturwerte gerade zu den Bowing-Parametern stark schwanken [39].

Für einen  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Mischkristall gilt am  $\Gamma$ -Punkt [55]:

$$\begin{aligned} E_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}^g(x) &= 1,424 \text{ eV} + x \cdot 1,247 \text{ eV} \quad \text{für } 0 < x < 0,45, \\ E_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}^g(x) &= 1,424 \text{ eV} + x \cdot 1,247 \text{ eV} + (x - 0,45)^2 \cdot 1,147 \text{ eV} \quad \text{für } 0,45 < x < 1. \end{aligned}$$

Hierbei ist zu beachten, dass der Übergang am  $\Gamma$ -Punkt in einem  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  Mischkristall bei einem Aluminiumgehalt größer als  $x \approx 0,4$  indirekt wird [55].

Auch der Gitterabstand variiert mit der Zusammensetzung des Kristalls, was die Ursache von wachstumsbedingten Verspannungen sein kann. Entscheidend ist dabei der Gittervektor senkrecht zur Wachstumsrichtung, d. h. die  $a$ - und  $b$ -Achse in der Wurtzit-Struktur, wenn die Probe in  $c$ -Richtung gewachsen wurde. Nach der Vegardschen Regel hängt der Gitterabstand näherungsweise linear von der Konzentration des Aluminiums, bzw. Indiums ab. Für die in Abbildung 2.1 dargestellten Abmessungen der Elementarzelle gilt mit einem relativen Anteil  $x$  der Substitutionsatome [29, 39]:

$$\begin{aligned} a_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}(x) &= (0,31986 - 0,00891 \cdot x) \text{ nm}, \\ c_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}(x) &= (0,52262 - 0,02323 \cdot x) \text{ nm}, \\ a_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}(x) &= (0,31986 + 0,03826 \cdot x) \text{ nm}, \\ c_{\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}}(x) &= (0,52262 + 0,057 \cdot x) \text{ nm}, \\ a_{\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}}(x) &= (0,56533 + 0,00078 \cdot x) \text{ nm}. \end{aligned}$$

Die Gitterkonstanten von GaAs und AlAs unterscheiden sich um weniger als 0,2 % bei 300 K, was die Herstellung von Heterostrukturen mit fast beliebigen Dicken der einzelnen Schichten ermöglicht [55]. In Abbildung 2.7 (a) sind die Bandlücken über den Gitterabständen von AlGaAs-, InGaAs-, InAlN- und AlGaAs-Mischkristallen dargestellt. Die Werte dieser ternären Halbleiter befinden sich auf den Verbindungslinien zwischen den Punkten ihrer binären Komponenten.

### 2.3.3. Heterostrukturen und Übergitter

Durch das gezielte epitaktische Wachsen einzelner Schichten von Materialien mit verschiedenen Bandstrukturen kann eine sog. Heterostruktur hergestellt werden. In dieser werden die elektronischen Eigenschaften senkrecht zu den Schichten modifiziert. Abhängig von der Diskontinuität des Bandkantenverlaufs kann zwischen drei verschiedenen Arten von Bandübergängen in Heterostrukturen unterschieden werden, siehe Abbildung 2.7 (b). In Strukturen des Typs I stellt das Material  $B$  sowohl für Elektronen als auch für Löcher

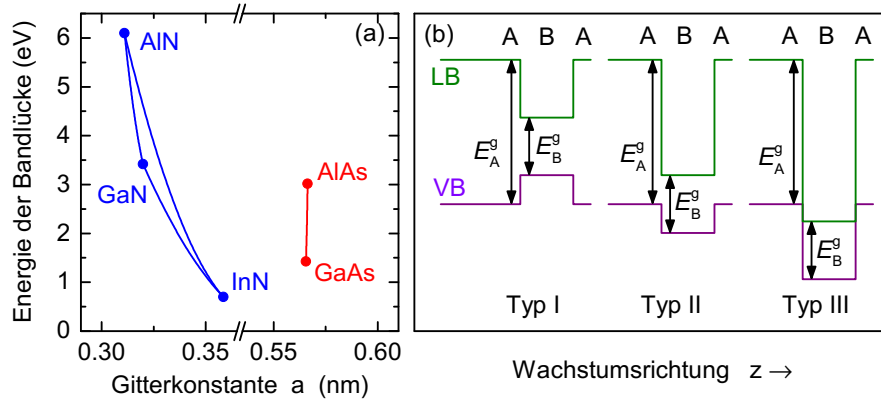


Abbildung 2.7.: (a) Bandlücke von Mischkristallen über der Gitterkonstante. Die Werte ternärer Halbleiter befinden sich auf den Verbindungslinien zwischen ihren binären Komponenten. Literaturwerte für Nitride aus [39, 52–54], Literaturwerte für Arsenide aus [55]. (b) Schematischer Verlauf der Leitungs- (LB) und Valenzbandkante (VB) eines Quantenfilms  $B$  mit geringerer Bandlücke zwischen Material  $A$ . Abhängig von dem Sprung an der Grenzfläche zwischen zwei Materialien lässt sich zwischen Typ I, Typ II und Typ III unterscheiden.

einen Quantenfilm dar, in Typ II hingegen fungiert es nur für Elektronen als Quantenfilm, für Löcher aber als Barriere. Der Vollständigkeit halber soll an dieser Stelle auch die unterbrochene Bandlücke (Typ III) erwähnt werden [30]. Ist die Breite eines Quantenfilms in der Größenordnung der De-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger  $\lambda = h/\sqrt{2m^*E}$  mit der effektiven Masse  $m^*$  und der Energie  $E$  des Ladungsträgers, so treten durch das sog. *quantum confinement* quantenmechanische Effekte in Wachstumsrichtung wie diskrete Energieniveaus auf. Die in dieser Arbeit diskutierten AlGaIn/GaN Übergitterstrukturen verfügen über Banddiskontinuitäten des Typs I [56], vgl. Abbildung 2.7 (b). Bei AlAs/GaAs Übergittern ist die Banddiskontinuität des Leitungsbands von Schichtdicken und Druck abhängig [57, 58].

Im Folgenden werden nun die elektronischen Eigenschaften in zweidimensionalen Systemen anhand der Näherung der Einhüllendenfunktion der Elektronenwellen diskutiert. Zur Vereinfachung beschränken wir uns auf Elektronen im Leitungsband mit folgender Wellenfunktion  $\Psi$  [59, 60]:

$$\Psi = \sum_{A,B} e^{i\mathbf{k}_\perp \cdot \mathbf{r}} u_{c\mathbf{k}}^{A,B}(\mathbf{r}) \psi(z), \quad (2.22)$$

wobei  $\mathbf{k}_\perp$  der Wellenvektor der Elektronen senkrecht zur Wachstumsrichtung  $z$  ist.  $u_{c\mathbf{k}}^{A,B}(\mathbf{r})$  ist die gitterperiodische Blochfunktion im Material  $A$  bzw.  $B$  und  $\psi(z)$  die einhüllende Wellenfunktion in  $z$ -Richtung. Innerhalb eines Materials erfüllt  $\psi(z)$  die Schrödinger-Gleichung [60]:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + U \right) \psi(z) = E\psi(z), \quad (2.23)$$

wobei  $U$  die Unterkante des Leitungsbands ist. Die Wellenfunktion  $\psi(z)$  mit  $k_x, k_y = 0$  für einen einzelnen Quantenfilms aus Material  $A$  mit der Dicke  $d_{\text{QW}}$  und  $U = 0$ , der sich im Material  $B$  mit  $U = V$  befindet, ist in Abbildung 2.8 (a) dargestellt. Im Energiebe-

reich  $E < V$  fällt die Einhüllendenfunktion  $\psi(z)$  im Material  $B$  exponentiell ab und bildet evaneszente Wellen. Für den Spezialfall unendlich hoher Potentialwände, d. h.  $V \rightarrow \infty$ , können analytische Ausdrücke für die Energieeigenwerte und Eigenvektoren in den jeweiligen Subbändern mit der Quantenzahl  $N$  gegeben werden:

$$E_N = \frac{\hbar^2}{2m^*} \left( \frac{N\pi}{d_{\text{QW}}} \right)^2, \quad \psi(z) = \psi_0 \sin \left( \frac{N\pi z}{d_{\text{QW}}} \right), \quad \text{mit } N = 1, 2, 3... \quad (2.24)$$

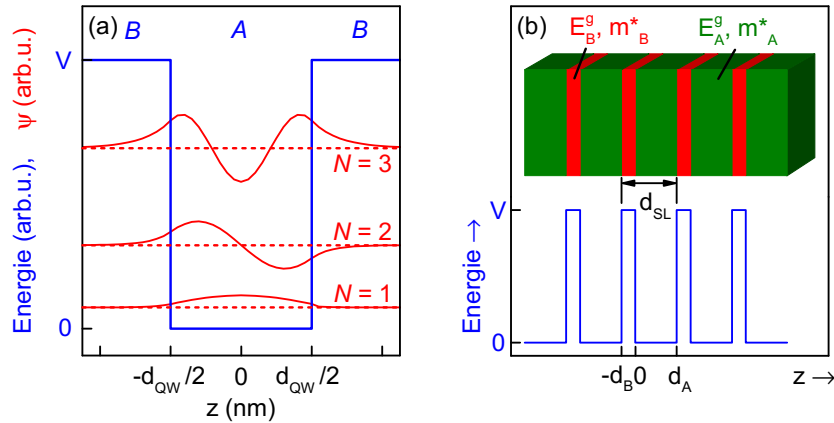


Abbildung 2.8.: (a) Wellenfunktionen  $\psi(z)$  in einem einzelnen Quantenfilm, (b) Skizze der Leitungsbandunterkante einer Übergitterstruktur.

Hinreichend dünne Barrieren erlauben eine Kopplung der elektronischen Wellenfunktionen in benachbarten Quantenfilmen, sodass die künstliche Periodizität eines Übergitters elektronische Minibänder bilden kann. In einem solchen Übergitter mit einem Bandkantenverlauf des Leitungsbands entsprechend Abbildung 2.8 (b) müssen die Einhüllendenfunktionen  $\psi_A(z)$  in den Quantenfilmen aus Material  $A$  und  $\psi_B(z)$  in den Barrieren aus Material  $B$  zwei Grenzbedingungen erfüllen. So muss an jeder Grenzfläche bei  $z = z_i$  zwischen Quantenfilm und Barriere die Wellenfunktion stetig sein [59]:

$$\psi_A(z_i) = \psi_B(z_i). \quad (2.25)$$

Zusätzlich muss die Stromdichte an der Grenzschicht zwischen Quantenfilm und Barriere stetig sein. Bei parabolischen Bändern mit unterschiedlichen effektiven Massen in Material  $A$  und  $B$  gilt somit [59]:

$$\frac{1}{m_A^*} \frac{\partial \psi_A(z)}{\partial z} \Big|_{z=z_i} = \frac{1}{m_B^*} \frac{\partial \psi_B(z)}{\partial z} \Big|_{z=z_i}. \quad (2.26)$$

In diesem Punkt unterscheidet sich dieses Modell von dem Kronig-Penney-Modell, welches identische effektive Massen in beiden Materialien annimmt [61]. Die Wellenfunktionen in Quantenfilm und Barriere müssen zusätzlich das Bloch-Theorem erfüllen, d. h. es existiert zwischen zwei Perioden  $d_{\text{SL}}$  des Übergitters eine Phasenbeziehung:

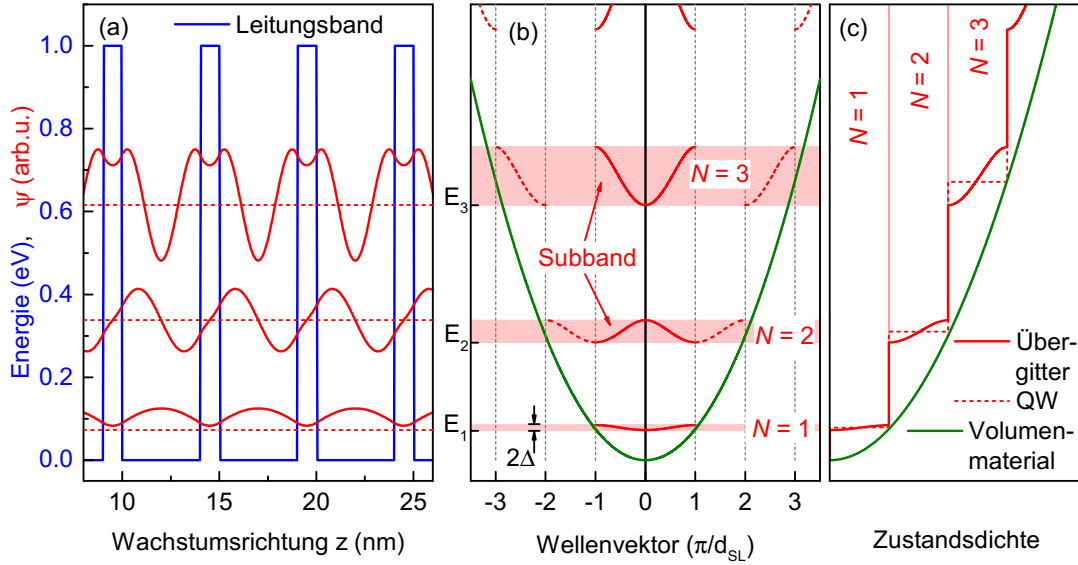


Abbildung 2.9.: (a) Wellenfunktionen bei  $q = 0$  der Elektronen in einem periodischen Potential entsprechend der blauen Kurve. (b) Dispersionsrelation der Ladungsträger entlang der Wachstumsrichtung (rote Linie) und im Volumenmaterial, bzw. senkrecht zur Wachstumsrichtung (grüne Linie). Die durchgezogene rote Linie gibt die Minibandstruktur im reduzierten Zonenschema wieder. (c) Zu der Minibandstruktur in (b) gehörende Zustandsdichten eines Übergitters (durchgezogene rote Linie) und eines Quantenfilms (gestrichelte rote Linie). Die grüne Linie entspricht der Zustandsdichte der Elektronen im Volumenmaterial.

$\psi(z + d_{SL}) = \psi(z) \cdot \exp(iqd_{SL})$ . Daraus erhält man folgende Bedingung, die die Lösungen der Schrödingergleichung erfüllen müssen:

$$\cos(qd_{SL}) = \cos(k_A d_A) \cdot \cosh(k'_B d_B) - \frac{1}{2} \left( \frac{k_A m_B^*}{k'_B m_A^*} - \frac{k'_B m_A^*}{k_A m_B^*} \right) \cdot \sinh(k'_B d_B) \cdot \sin(k_A d_A), \quad (2.27)$$

mit

$$k_A = \frac{\sqrt{2m_A^* E}}{\hbar} \quad \text{und} \quad k'_B = \frac{\sqrt{2m_B^* (V - E)}}{\hbar}. \quad (2.28)$$

Für Zustände mit einer Energie unterhalb der Leitungsbandkante der Barriere wird der Wellenvektor  $k_B = \sqrt{2m_B^* (E - V)}/\hbar$  imaginär. Analog zum Quantenfilm in Abbildung 2.8 (a) sind in Abbildung 2.9 (a) die Wellenfunktionen bei  $q = 0$  der drei niedrigsten Subbänder dargestellt.

Die reellen Lösungen für die Energie  $E$ , die die Gleichung (2.27) erfüllen, ergeben die elektronische Minibandstruktur, die in Abbildung 2.9 (b) als rote Linie dargestellt ist. Die Dispersionsrelation parallel zu den Schichten, d. h. in  $x$ - und  $y$ -Richtung, bleibt davon unberührt und weist weiterhin am  $\Gamma$ -Punkt näherungsweise eine parabolische Form auf.

### Zustandsdichte in Übergittern

Die Dispersionsrelation in  $z$ -Richtung aus Gleichung (2.27) lässt sich für das erste Subband durch eine Entwicklung um das Energieminimum  $E_1$  vereinfachen zu [62]:

$$E(q) = E_1 + \Delta(1 - \cos(qd_{\text{SL}})) \quad (2.29)$$

Die Minibandbreite des Subbands beträgt hierbei  $2\Delta$ , vgl. Abbildung 2.9 (b). Für die dazugehörige zweidimensionale Zustandsdichte des ersten Subbands ( $N = 1$ ) gilt [62, 63]:

$$D_{\text{SL}}(E) = \frac{m_A^*}{\pi^2 \hbar^2} \begin{cases} 0 & \text{für } E(q) < E_1 \\ \arccos\left(\frac{-E(q) + E_1 + \Delta}{\Delta}\right) & \text{für } E_1 \leq E(q) \leq E_1 + 2\Delta \\ \pi & \text{für } E(q) > E_1 + 2\Delta \end{cases} \quad (2.30)$$

In Abbildung 2.9 (b) ist die Zustandsdichte als durchgezogene rote Linie für das erste Subband und die höheren Subbänder ( $N = 2, N = 3$ ) dargestellt. Zur Vereinfachung wird nun die Minibandbreite  $2\Delta$  vernachlässigt. Für Energien  $E > E_1$  ist die Zustandsdichte konstant:  $D_{2\text{D}}(E) = m_A^*/(\pi \hbar^2)$  [63]. Dies entspricht der Zustandsdichte eines einzelnen Quantenfilms, symbolisiert durch die gestrichelte rote Linie in Abbildung 2.9 (c). Da die Verteilung der Elektronen im thermischen Gleichgewicht bei einer Temperatur  $T$  durch die Fermi-Verteilung  $f(E, \mu, T)$  gegeben ist, kann die zweidimensionale Ladungsträgerdichte  $n(\mu, T)$  unter Berücksichtigung des chemischen Potentials  $\mu$  und bei nur einem besetzten Subband berechnet werden durch:

$$n(\mu, T) = \int_{E_1}^{\infty} D_{2\text{D}}(E) f(E, \mu, T) dE = \frac{m_A^* k_B T}{\pi \hbar^2} \ln \left( 1 + \exp \left( \frac{\mu - E_1}{k_B T} \right) \right), \quad (2.31)$$

$k_B$  ist die Boltzmann-Konstante. Bei bekannter Ladungsträgerdichte kann aus Gleichung (2.31) das chemische Potential berechnet werden:

$$\mu(n, T) = k_B T \ln \left( \exp \left( \frac{n \pi \hbar^2}{m_A^* k_B T} \right) - 1 \right) + E_1. \quad (2.32)$$

## 2.4. Wechselwirkungsmechanismen

Im folgenden Abschnitt werden die relevanten Wechselwirkungsmechanismen behandelt. Dabei wird zuerst auf die Elektron-Phonon-Wechselwirkung und Phonon-Phonon-Wechselwirkung eingegangen. Anschließend folgen Erläuterungen zur Wechselwirkung zwischen Licht und Materie.

### 2.4.1. Elektron-Phonon-Wechselwirkung

Die Dynamik eines Elektronengases in einem Nichtgleichgewichtszustand wird bestimmt durch den Einfluss einer äußeren Störung, durch Diffusion der Ladungsträger und durch die Streuung der Ladungsträger an beispielsweise Phononen, Defekten und anderen Ladungsträgern. Für die zeitliche Veränderung der Fermi-Verteilung  $f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)$  des Elektronengases gilt nach der Boltzmann-Gleichung [30]:

$$\frac{df(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)}{dt} = \left. \frac{\partial f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)}{\partial t} \right|_{\text{Störung}} + \left. \frac{\partial f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)}{\partial t} \right|_{\text{Diffusion}} + \left. \frac{\partial f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)}{\partial t} \right|_{\text{Stoss}}, \quad (2.33)$$

Die Intrabandrelaxation eines angeregten Elektron-Loch-Plasmas in einen Gleichgewichtszustand geschieht hauptsächlich über Streuprozesse, die durch den letzten Term in Gleichung (2.33) beschrieben werden. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron vom Zustand  $\mathbf{k}$  in den Zustand  $\mathbf{k}'$  gestreut wird, sei  $S(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ , die Wahrscheinlichkeit zur Rückstreuung vom Zustand  $\mathbf{k}'$  in den Zustand  $\mathbf{k}$  entsprechend  $S(\mathbf{k}', \mathbf{k})$ . Es finden nur Streuprozesse von einem besetzten in einen unbesetzten Zustand statt, deren Wahrscheinlichkeit gegeben ist durch  $f_{\mathbf{k}} \cdot (1 - f_{\mathbf{k}'})$ , bzw.  $f_{\mathbf{k}'} \cdot (1 - f_{\mathbf{k}})$ , wobei  $f_{\mathbf{k}}$  ( $f_{\mathbf{k}'}$ ) die Notation für die Fermi-Verteilung  $f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)$  ( $f(\mathbf{r}, \mathbf{k}', t)$ ) ist. Für die zeitliche Änderung der Verteilungsfunktion aufgrund von Streuung gilt somit [64]:

$$\left. \frac{\partial f(\mathbf{r}, \mathbf{k}, t)}{\partial t} \right|_{\text{Stoss}} = \int (f_{\mathbf{k}'} \cdot (1 - f_{\mathbf{k}})) S(\mathbf{k}', \mathbf{k}) - f_{\mathbf{k}} \cdot (1 - f_{\mathbf{k}'}) S(\mathbf{k}, \mathbf{k}') d^3 k'. \quad (2.34)$$

Mit Fermis goldener Regel kann die Übergangswahrscheinlichkeit berechnet werden zu:

$$S(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \mathbf{k} | H_{\text{Streu}} | \mathbf{k}' \rangle|^2 (\delta(E(\mathbf{k})) - \delta(E(\mathbf{k}'))). \quad (2.35)$$

wobei  $H_{\text{Streu}}$  der Störoperator ist. Die einzelnen Wechselwirkungsmechanismen zwischen Elektronen und Phononen mit den entsprechenden Hamiltonoperatoren werden im Folgenden beschrieben.

### Wechselwirkung mit akustischen Phononen

Phononen verzerren den lokalen Gitterabstand, was eine Änderung der Energiebänder des Kristalls verursacht. Aufgrund dieser lokalen Modifizierung der Bandstruktur, d. h. des **Deformationspotentials** [65], kann ein Phonon mit einem Elektron wechselwirken. Wird nun exemplarisch ein LA-Phonon in  $z$ -Richtung mit der Frequenz  $\Omega$  und dem Wellenvektor  $\mathbf{q}$  betrachtet, dann gilt für die Verschiebung der Atome:

$$\mathbf{u}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{u}_0 \exp(i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \Omega t)). \quad (2.36)$$



Diese periodische Ausdehnung und Kompression des Mediums resultiert in einer Variation des Volumens  $\delta V$  des Kristalls, was zu einer Verschiebung der Energie  $\delta E_{n\mathbf{k}}$  des Bandes  $n$  am Ort  $\mathbf{k}$  im  $k$ -Raum führt [30]:

$$\delta E_{n\mathbf{k}} = \Xi_{n\mathbf{k}} \frac{\delta V}{V}. \quad (2.37)$$

$\Xi_{n\mathbf{k}}$  ist hierbei das Volumendeformationspotential. Der Hamiltonoperator für ein eindimensionales LA-Phonon entsprechend der Gleichung (2.36) lautet [30]:

$$H_{e-LA} = \Xi_{nk_z}(\mathbf{q} \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}, t)). \quad (2.38)$$

In dieser Betrachtung werden nur nichtentartete Bänder berücksichtigt.

In polaren Kristallen ohne Inversionssymmetrie bewirkt die durch die Phononen verursachte Verzerrung ein piezoelektrisches Feld entsprechend Gleichung (2.6). Für ein LA-Phonon aus Gleichung (2.36) gilt dann für das resultierende elektrische Feld [30]:

$$\mathbf{E}_{\text{pe}} = \frac{e_{\text{pe}}}{\varepsilon_0 \varepsilon_r^\infty} \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) i\mathbf{q}. \quad (2.39)$$

Dabei ist  $e_{\text{pe}}$  der piezoelektrische Tensor und  $\varepsilon_r^\infty$  die relative Permittivität bei hohen Frequenzen. Über die **piezoelektrische Wechselwirkung** koppeln an dieses Feld Ladungsträger mit der Elementarladung  $|e_{\text{el}}|$ , sodass für den Hamiltonoperator unter Berücksichtigung des durch das piezoelektrische Feld verursachten Potentials  $\Phi_{\text{pe}}$  gilt [30]:

$$H_{\text{pe}} = -|e_{\text{el}}|\Phi_{\text{pe}} = -|e_{\text{el}}| \int \mathbf{E}_{\text{pe}} d\mathbf{r} = \frac{|e_{\text{el}}|}{\varepsilon_0 \varepsilon_r^\infty} e_{\text{pe}} \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \quad (2.40)$$

Der Vergleich zwischen dem Deformationspotential der Elektron-LA-Phonon Wechselwirkung in Gleichung (2.38) und der piezoelektrischen Wechselwirkung in Gleichung (2.40) zeigt, dass die piezoelektrische Wechselwirkung mit dem Faktor  $1/q$  gegenüber derjenigen über das Deformationspotential abfällt.

### Wechselwirkung mit optischen Phononen

Optische Phononen verursachen keine makroskopische Deformation, sondern eine lokale mikroskopische Verzerrung. Auch diese mikroskopische Verzerrung bewirkt durch eine Änderung der Bindungslänge oder des Bindungswinkels über das optische Deformationspotential sowohl in polaren als auch in nichtpolaren Halbleitern eine Modifizierung der elektronischen Bandstruktur.

Zusätzlich bewirkt in polaren Kristallen ein optisches Phonon eine relative Verschiebung  $\mathbf{u}$  der teilgeladenen Atome innerhalb der Elementarzelle. Für das elektrische Feld  $\mathbf{E}_{\text{LO}}$  der dabei induzierten Polarisation gilt [30]:

$$\mathbf{E}_{\text{LO}} = -F \mathbf{u}_{\text{LO}}, \quad \text{mit} \quad F = - \left( \frac{N_{\text{EV}} M_1 M_2 \Omega_{\text{LO}}^2}{\varepsilon_0 (M_1 + M_2)} \left( \frac{1}{\varepsilon_r^\infty} - \frac{1}{\varepsilon_r^s} \right) \right)^{1/2}. \quad (2.41)$$

$N_{\text{EV}}$  ist die Anzahl der Elementarzellen pro Einheitsvolumen,  $M_1$  und  $M_2$  sind die Massen der Atome in der Elementarzelle.  $\varepsilon_r^\infty$  und  $\varepsilon_r^s$  ist die relative dielektrische Permittivität bei hohen und niedrigen Frequenzen. Das longitudinale elektrische Feld  $\mathbf{E}_{\text{LO}}$  in Gleichung (2.41) erzeugt ein Potential  $\Phi_{\text{LO}}$ , das auf ein Elektron wirkt. Für den Hamiltonoperator dieser sogenannten **Fröhlich-Wechselwirkung** [66] gilt:

$$H_{\text{Fr}} = (-e_{\text{el}})\Phi_{\text{LO}} \quad \text{mit} \quad \Phi_{\text{LO}} = (F/iq)\mathbf{u}_{\text{LO}}. \quad (2.42)$$

Nach Gleichung (2.42) ist wieder eine  $1/q$ -Abhängigkeit gegeben. Das Potential wird folglich größer, je kleiner der Wellenvektor des Phonons ist. Bei Raumtemperatur spielt die Fröhlich-Wechselwirkung bei der Energierelaxation der photogenerierten Ladungsträger in polaren Halbleitern wie GaAs und GaN eine entscheidende Rolle.

### 2.4.2. Phonon-Phonon-Wechselwirkung

Das Kühlen heißer Ladungsträger, die beispielsweise durch Absorption von Licht mit Photonenenergien oberhalb der Bandkante erzeugt werden, geschieht in polaren Halbleitern hauptsächlich durch die Emission von LO-Phononen über die Fröhlich-Wechselwirkung. Eine hohe Dichte von heißen Ladungsträgern führt dadurch zu einer hohen Besetzungszahl der LO-Phonon-Zustände. Dadurch können die Ladungsträger wiederum LO-Phononen absorbieren, was ihre Energieverlustrate verringert. Im Gegensatz zu akustischen Phononen haben LO-Phononen sehr kleine Gruppengeschwindigkeiten, sodass ihre Dichte kaum über Transport, sondern hauptsächlich über anharmonische Zerfälle abnimmt [67]. Solche Zerfälle erfordern, dass das Gitterpotential über den harmonischen Term hinaus Anharmonizitäten aufweist.

Die Lebensdauer der optischen Phononen hängt von den Kanälen ab, über die sie unter Berücksichtigung der Energie- und Impulserhaltung in Phononen niedrigerer Energie wie longitudinal-akustische (LA), transversal-akustische (TA) oder transversal-optische (TO) Phononen zerfallen können. Für LO-Phononen sind die folgenden Drei-Phononen-Prozesse am wichtigsten:

- Zerfall eines optischen Phonons in zwei akustische Phononen:  $\text{LO} \rightarrow \text{LA} + \text{LA}$ ;  $\text{LO} \rightarrow \text{LA} + \text{TA}$ ;  $\text{LO} \rightarrow \text{TA} + \text{TA}$ . [68],
- Zerfall eines LO-Phonons in ein TO- und ein akustisches Phonon:  $\text{LO} \rightarrow \text{TO} + \text{LA}$ ;  $\text{LO} \rightarrow \text{TO} + \text{TA}$  [69],
- Zerfall eines LO-Phonons in ein akustisches Phonon und ein Phonon des gleichen optischen Zweigs mit niedrigerer Energie am Zonenrand:  $\text{LO} \rightarrow \text{LO (Zonenrand)} + \text{LA}$ ;  $\text{LO} \rightarrow \text{LO (Zonenrand)} + \text{TA}$  [70, 71].

In vielen kubischen Kristallen wie GaAs stellt der Zerfall eines optischen Phonons in zwei akustische Phononen den dominierenden Prozess dar. Bei GaN hingegen ist durch den großen Massenunterschied zwischen Stickstoff und Gallium die Energie von LO-Phononen mehr als doppelt so groß wie die der energiereichsten akustischen Phononen, vgl. Abbildung 2.3. Dies verhindert den Zerfall eines optischen Phonons in zwei akustische Phononen, sodass bei einem Zerfall eines LO-Phonons immer ein optisches Phonon niedrigerer Energie emittiert wird [69, 72]. Verglichen mit GaAs kann dies die Lebensdauer von LO-Phononen in GaN verlängern.

### 2.4.3. Licht-Materie-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt wird die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie behandelt. Zuerst wird auf die Absorption und stimulierte Emission von Licht eingegangen. Es folgen Erläuterungen zur Lumineszenz mit einer phänomenologischen Beschreibung der verschiedenen Rekombinationsmechanismen der Elektronen mit Löchern sowie anschließend die Raman-Streuung an zonengefalteten Phononen.

#### Stimulierte Emission und Absorption

Bei der Wechselwirkung zwischen einer einfallenden elektromagnetischen Welle der Frequenz  $\omega$  mit einem Elektron lautet der Hamiltonoperator [30]:

$$H = H_0 + H_{eR} \quad \text{mit} \quad H_{eR} = \frac{e}{m} \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}. \quad (2.43)$$

Hierbei ist  $H_{eR}$  der durch die elektromagnetische Welle verursachte Störterm mit dem Vektorpotential  $\mathbf{A}$  des elektrischen Feldes und dem Impulsoperator  $\mathbf{p}$ . Wenn die Wechselwirkung mit dem Magnetfeld der elektromagnetischen Welle für das betrachtete System vernachlässigbar ist und wenn die räumliche Variation des elektrischen Feldes vernachlässigt werden kann, da die Wellenlänge der elektromagnetischen Welle groß gegenüber des Gitterabstands ist, kann die elektrische Dipolnäherung angewendet werden. Es gilt somit  $H_{eR} = (-e_{el})\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$  mit einem ortsunabhängigen elektrischen Feld  $\mathbf{E}$ . Anhand der zeitabhängigen Störungstheorie kann mit Hilfe von Fermis goldener Regel die Übergangswahrscheinlichkeit berechnet werden, dass ein Photon mit der Energie  $\hbar\omega$  einen Übergang bei einem bestimmten Wellenvektor  $\mathbf{k}$  bewirkt, wobei einer der beteiligten Zustände im Valenz- und Leitungsband besetzt und einer frei sein muss [64]:

$$W(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle c | H_{eR} | v \rangle|^2 \delta(E_c(\mathbf{k}) - E_v(\mathbf{k}) - \hbar\omega). \quad (2.44)$$

$\langle c | H_{eR} | v \rangle$  stellt das Übergangsmatrixelement zwischen einem Zustand im Leitungsband  $|c\rangle$  und einem im Valenzband  $|v\rangle$  dar.

In Anwesenheit einer elektromagnetischen Welle wird bei einem Übergang vom Valenz- ins Leitungsband das Photon absorbiert, ein Übergang vom Leitungs- ins Valenzband bewirkt eine stimulierte Emission eines zweiten Photons. Zur Ermittlung des Absorptionskoeffizienten, oder im Falle einer Besetzungsinversion des Verstärkungskoeffizienten, muss die Gleichung (2.44) über alle Wellenvektoren  $k$  integriert werden. Mit der Vernachlässigung der  $k$ -Abhängigkeit des Übergangsmatrixelements kann eine kombinierte Zustandsdichte  $D'$  eingeführt werden, für die in einem 2D-System gilt [64]:

$$D'(\hbar\omega) = \frac{1}{2\pi^2} \int \delta(E_c(\mathbf{k}) - E_v(\mathbf{k}) - \hbar\omega) d^2k. \quad (2.45)$$

In Quantenfilmen und Übergittern existiert neben der Impulserhaltung zusätzlich eine Auswahlregel, die Übergänge zwischen Zuständen im Valenz- und Leitungsband mit gleicher Quantenzahl  $N$  des elektronischen Minibands bevorzugt, d. h.  $\Delta N = 0$ . Wird der Fall eines Interbandübergangs durch Absorption betrachtet, so ist die Übergangswahrscheinlichkeit proportional zur Dichte der besetzten Zustände im Valenzband multipliziert mit der Dichte der freien Zustände im Leitungsband. Im Folgenden gilt die Schreibweise:  $f(E_c(\mathbf{k}), \mu_c, T) = f_c$  und  $f(E_v(\mathbf{k}), \mu_v, T) = f_v$ , sodass für die Absorption gilt:

$f_v \cdot (1 - f_c)$ . Dies wird verringert durch die Wahrscheinlichkeit der Emission, d. h. eines Übergangs von einem besetzten Zustand im Leitungsband in einen unbesetzten Zustand im Valenzband:  $f_c \cdot (1 - f_v)$ . Daraus ergibt sich eine Nettoübergangswahrscheinlichkeit von  $f_v \cdot (1 - f_c) - f_c \cdot (1 - f_v) = f_v - f_c$  und somit einen resultierenden Absorptionskoeffizienten eines 2D-Systems von [64]:

$$\alpha_{\text{abs}}(\omega) = \frac{2\pi e^2}{m^2 \varepsilon_0 \tilde{n} c \omega} |\langle v | H_{eR} | c \rangle|^2 D'(\hbar\omega) (f_v - f_c). \quad (2.46)$$

Hierbei ist  $\tilde{n}$  der Brechungsindex und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit.

Die Erzeugung von Nichtgleichgewichtsträgern führt zu einer Separierung des Fermi-Niveaus in zwei Quasi-Fermi-Niveaus  $\mu_v$  für Löcher und  $\mu_c$  für Elektronen entsprechend Gleichung (2.32), sowie zu einer Temperaturerhöhung der jeweiligen Ladungsträgerart. Werden die nun modifizierten Fermi-Verteilungen  $f_c$  und  $f_v$  in die Gleichung (2.46) eingesetzt, so führt dies zu einer Reduktion des Absorptionskoeffizienten nahe der Bandkante.

Die Form eines PL-Spektrums von Band-Band-Übergängen eines direkten Halbleiters ist ebenfalls proportional zur kombinierten Zustandsdichte  $D'(\hbar\omega)$  multipliziert mit der Anzahl der freien Zustände im Valenzband und der besetzten Zustände im Leitungsband. Bei geringen Ladungsträgerdichten ist der Halbleiter nicht entartet, d.h. die Quasi-Fermi-Niveaus befinden sich in der Bandlücke. Der hochenergetische Bereich der Fermi-Verteilung der Elektronen  $f_c$  und der Löcher  $f_v$  kann nun durch eine Boltzmann-Verteilung angenähert werden. Bei Vernachlässigung einer  $k$ -Abhängigkeit des Übergangsmatrixelements gilt für die spektrale Verteilung der Intensität für  $\hbar\omega > E_g$  [30]:

$$I_{\text{PL}}(\omega) \propto D'(\hbar\omega) \cdot \exp\left(-\frac{\hbar\omega - E_g}{k_B T}\right). \quad (2.47)$$

Aus der hochenergetischen Flanke eines PL-Spektrums lässt sich folglich die Temperatur  $T$  der Ladungsträger ermitteln.

## Lumineszenz

Die strahlende Rekombination eines in das Leitungsband eingebrachten Elektrons mit einem Loch im Valenzband unter Aussendung eines Photons wird als Lumineszenz bezeichnet. Die Anregung kann beispielsweise durch Licht (Photolumineszenz), durch einen angelegten Strom (Elektrolumineszenz) oder den Beschuss mit Elektronen (Kathodolumineszenz) geschehen. Die anschließende Rekombination der Elektronen mit Löchern geschieht bei direkten Halbleitern, in denen das Minimum des Leitungsbands und das Maximum des Valenzbands am gleichen Ort im  $k$ -Raum liegen, besonders effektiv. Sowohl GaAs als auch GaN sind direkte Halbleiter, siehe Abbildungen 2.5 und 2.6 (a).

In dieser Arbeit basiert die Charakterisierung der Proben zum Großteil auf der Messung der Photolumineszenz (PL). Die einzelnen physikalischen Prozesse eines PL-Experiments werden im Folgenden in der Reihenfolge der zeitlichen Dominanz ihres Einflusses auf die Ladungsträgerkinetik erläutert, die sich zum Teil zeitlich überschneiden können. Schematisch sind sie in Abbildung 2.10 (a) dargestellt. Der Laserimpuls mit der Photonenenergie  $E_{\text{Exc}}$  erzeugt eine nichtthermische Verteilung photogenerierter Ladungsträger bei der Überschussenergie des Impulses, d. h. bei  $E_{\text{Exc}} - E_g$ . Durch Streuung zwischen

den Ladungsträgern und durch Phononemission relaxieren diese zum Minimum des Leitungsbands, bzw. zum Maximum des Valenzbands, dargestellt durch die grünen Pfeile in Abbildung 2.10 (a). Dabei stellt sich für Elektronen und Löcher jeweils eine Fermi-Verteilung mit Temperaturen oberhalb der Gittertemperatur ein. Nach dieser sogenannten Thermalisierung folgt die Abkühlung der Ladungsträgertemperatur zur Gittertemperatur durch die Emission von Phononen [21, 73]. Im Falle der Lumineszenz folgt die spontane Emission eines Photons. Dies geschieht unter der Beachtung der Auswahlregel, die Übergänge zwischen elektronischen Minibändern gleicher Quantenzahl bevorzugt.

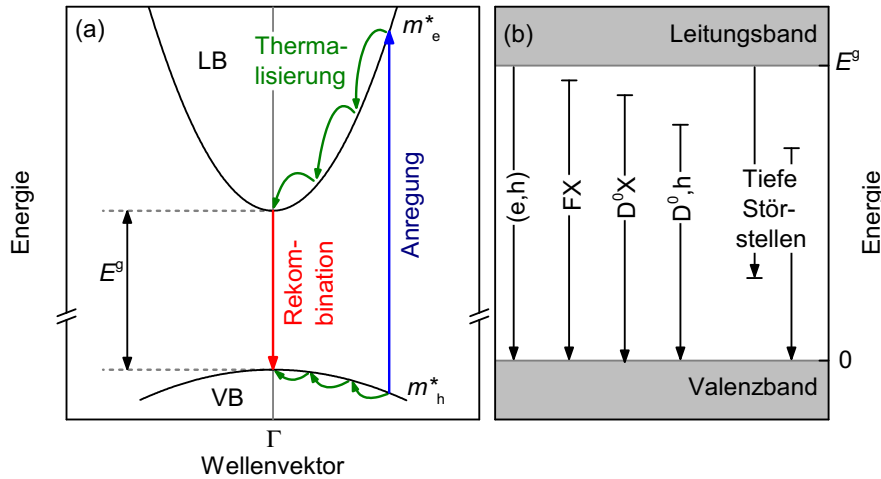


Abbildung 2.10.: (a) Bandstruktur am  $\Gamma$ -Punkt in der parabolischen Näherung. In einem Photolumineszenzexperiment werden Elektron-Loch-Paare erzeugt und relaxieren anschließend durch Elektron-Elektron-Streuung und Phononemission zum Leitungsbandminimum, bzw. Valenzbandmaximum (Thermalisierung). Die anschließende Rekombination kann über verschiedene Mechanismen geschehen, die exemplarisch in (b) für einen  $n$ -dotierten Halbleiter skizziert sind.

Es existieren verschiedene Rekombinationsmechanismen der Elektronen und Löcher, die hier nur phänomenologisch erläutert werden sollen und in Abbildung 2.10 (b) exemplarisch für einen  $n$ -dotierten Halbleiter skizziert sind. Die direkte Rekombination von freien Elektronen und Löchern wird Band-Band-Übergang ( $e, h$ ) genannt. Durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen einem negativ geladenen Elektron und einem positiv geladenen Loch können beide Ladungsträger eine atomartige Verbindung eingehen und ein Exziton (X) bilden. Hierbei handelt es sich entweder um freie Exzitonen (FX) oder um gebundene Exzitonen (BX), die sich zum Beispiel an neutrale Donatoratome ( $D^0X$ ) oder Akzeptoratome ( $A^0X$ ) binden. Elektronen können ebenfalls mit an Akzeptoren gebundenen Löchern ( $A^0, e$ ), bzw. Löcher mit an Donatoren gebundenen Elektronen ( $D^0, h$ ) rekombinieren. Donator-Akzeptor-Paar Übergänge (DAP) liegen vor, wenn beide Ladungsträger an Donatoren, bzw. Akzeptoren gebunden sind. Auch können sie in tiefe Störstellen eingefangen werden und dort rekombinieren [49].

Sowohl die Bildung von Exzitonen als auch die Bindung freier Elektronen oder Löcher an Dotieratome verringert ihre potentielle Energie, was zu einer Rotverschiebung ihres

durch die Rekombination ausgesendeten Lichts führt. In GaN existieren drei Exzitonen, die häufig *A*-, *B*-, und *C*-Exzitonen genannt werden. In zweidimensionalen Systemen hängt ihre Bindungsenergie von der Quantenfilmdicke ab und erhöht sich beim energetisch höchsten *A*-Exziton von 20-30 meV auf 39 meV bei einer Dicke von 2 nm [39, 74]. Auch in GaAs erhöht sich die Bindungsenergie eines Schwerloch-Exzitons von 4,2 meV im Volumenmaterial auf 8 meV bei einer Quantenfilmdicke von 10 nm. [75, 76]. Die thermische Energie bei Raumtemperatur von 25 meV reicht aus, um in GaAs Exzitonen zu dissoziieren, weshalb diese den strahlenden Rekombinationsprozess nur bei tiefen Temperaturen dominieren. In GaN hingegen basiert aufgrund der hohen Exzitonbindungsenergie die PL auch bei Raumtemperatur zu einem Großteil auf exzitonischer Emission.

Bei Band-Band-Übergängen in einem undotierten Halbleiter beträgt die Rekombinationsrate  $dn/dt \propto (n_e n_h - n_i^2)$ , wobei  $n_e$  ( $n_h$ ) die Dichte der freien Elektronen (Löcher) und  $n_i$  die intrinsische Ladungsträgerdichte ist. Da die Rekombination von der Existenz zweier Teilchen, bzw. Quasiteilchen abhängt, handelt es sich hierbei um einen bimolekularen Prozess. Im Falle eines monomolekularen Rekombinationsprozesses über ein lokalisiertes Lumineszenzzentrum, wie beispielsweise eine Defektstelle oder ein Fremdatom, gilt für die Rekombinationsrate  $dn/dt \propto n$ , was einen exponentiellen Zerfall der angeregten Rekombinationszentren  $n$  mit einer charakteristischen Zerfallszeit  $\tau$  bewirkt [77]. Auch exzitonische Rekombination kann als ein monomolekularer Prozess verstanden werden. Die gesamte Rekombinationsrate setzt sich aus strahlenden Prozessen mit der Rate  $1/\tau_{\text{rad}}$  und nichtstrahlenden Prozessen mit einer Rate von  $1/\tau_{\text{nonrad}}$  zusammen. Die charakteristischen Zeiten der jeweiligen Rekombinationsraten addieren sich reziprok, sodass für die resultierende Zerfallszeit  $1/\tau_{\text{tot}}$  gilt:

$$\frac{1}{\tau_{\text{tot}}} = \frac{1}{\tau_{\text{rad}}} + \frac{1}{\tau_{\text{nonrad}}}. \quad (2.48)$$

Der nichtstrahlende Prozess kann auch das Einfangen der Ladungsträger in Störstellen umfassen. Ist die Verweildauer von eingefangenen Ladungsträgern in den Störstellen signifikant länger als die Zeitskalen der konkurrierenden Prozesse, so handelt es sich um sättigbare Störstellen. Die nichtstrahlende Rekombinationsrate nimmt folglich innerhalb der strahlenden Lebensdauer  $\tau_{\text{rad}}$  der Ladungsträger ab, was in einer Zunahme der Zerfallszeit resultiert und ein nichtexponentielles Verhalten bewirkt. Das Einfangen photogenerierter Ladungsträger ist gerade bei geringen Anregungsdichten dominierend [78].

Elektron-Loch-Paare, bei denen das Elektron und das Loch nicht über den gleichen Wellenvektor im Impulsraum verfügen, können unter Emission oder Absorption eines Phonons rekombinieren. Dieses sorgt für den Erhalt des  $k$ -Vektors und reduziert im Falle der Phononemission, bzw. erhöht im Falle der Phononabsorption die Emissionsenergie des Lumineszenzlichts. Im PL-Spektrum treten diese sogenannten Phononrepliken als zusätzliche um die Energie der LO-Phononen verschobene Linien auf [79]. Für eine Phononabsorption müssen die relevanten Phononzustände besetzt sein, was in GaAs mit einer LO-Phononenergie von 36 meV [40] bei Raumtemperatur wahrscheinlicher ist als in GaN mit einer LO-Phononenergie von 91 meV [41]. Insgesamt ist die Wahrscheinlichkeit eines Rekombinationsprozesses, in dem ein Phonon involviert ist, wesentlich kleiner als eine direkte Rekombination.

### Raman-Streuung an zonengefalteten Phononen

Ein weiterer Wechselwirkungsmechanismus zwischen Licht und Materie stellt die inelastische Streuung an Phononen dar. Die durch das elektrische Feld  $\mathbf{E}$  einer einfallenden elektromagnetischen Welle mit Frequenz  $\omega_i$ , Wellenvektor  $\mathbf{k}_i$  und Polarisation  $\hat{e}_i$  bewirkte elektrische Polarisation in dem Medium hängt von der Polarisierbarkeit der Atome ab, die ihrerseits wieder durch Gitterschwingungen moduliert wird. Über die Clausius-Mossotti-Gleichung ist die mikroskopische Polarisation mit der elektrischen Suszeptibilität verknüpft, die nun zur Beschreibung der inelastischen Lichtstreuung verwendet wird.

Bei kleinen atomaren Auslenkungen lässt sich die Suszeptibilität  $\chi(\mathbf{k}_i, \omega_i, \mathbf{u}(\mathbf{r}, t))$  um die Ruhelage der Atome entwickeln [30]:

$$\chi(\mathbf{k}_i, \omega_i, \mathbf{u}(\mathbf{r}, t)) = \chi_0(\mathbf{k}_i, \omega_i) + \left( \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{u}} \right)_0 \mathbf{u}_0 \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \Omega t) + \dots \quad (2.49)$$

Der erste Term entspricht der Suszeptibilität des fluktuationsfreien Mediums, der zweite Term beinhaltet die durch Phononen mit der Frequenz  $\Omega$  und Wellenvektor  $\mathbf{q}$  induzierte Suszeptibilität. Für die mit der induzierten Suszeptibilität verbundene Polarisation durch eine einfallende elektromagnetische Welle mit der Amplitude  $\mathbf{E}_0$  gilt:

$$\mathbf{P}_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) = \left( \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{u}} \right)_0 \mathbf{u}_0 \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \Omega t) \times \mathbf{E}_0 \cos(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega_i t), \quad (2.50)$$

Die Multiplikation der beiden Wellen ergibt zwei abstrahlende elektromagnetische Wellen, deren Frequenz  $\omega_s$  jeweils um  $\Omega$  und deren Wellenvektor  $\mathbf{k}_s$  jeweils um  $\mathbf{q}$  verschoben sind:

$$\omega_s = \omega_i \pm \Omega, \quad \text{und} \quad \mathbf{k}_s = \mathbf{k}_i \pm \mathbf{q}. \quad (2.51)$$

Sie können dem Stokes-Prozess (Frequenzreduzierung durch Emission eines Phonons) und dem Anti-Stokes-Prozess (Frequenzerhöhung durch Absorption eines Phonons) zugeordnet werden. Der Wellenvektor des beteiligten Phonons  $\mathbf{q}$ , und über die Dispersionsrelation auch seine Frequenz  $\Omega$ , hängen von der Streugeometrie ab, wobei gerade bei optischen Phononen nur eine geringe Abhängigkeit der Frequenz vom Wellenvektor existiert.

Da  $(\partial \chi / \partial \mathbf{u})_0$  im Kristall richtungsabhängig ist und einen Tensor zweiter Stufe darstellt, hängt die zeitlich gemittelte Intensität  $I_s$  des gestreuten Lichts von der Polarisation des einfallenden Lichts  $\hat{e}_i$  und der Polarisation des gestreuten Lichts  $\hat{e}_s$  ab. Mit Einführung des Raman-Tensors  $\mathbf{R}$  gilt [30]:

$$I_s \propto |\hat{e}_i \cdot \mathbf{R} \cdot \hat{e}_s|^2, \quad \text{mit} \quad \mathbf{R} = \left( \frac{\partial \chi}{\partial \mathbf{u}} \right)_0 \frac{\mathbf{u}(\Omega)}{|\mathbf{u}(\Omega)|}. \quad (2.52)$$

Anhand der Symmetrie des Raman-Tensors lassen sich die Raman-Auswahlregeln ermitteln.

Der Raman-Tensor in Übergittern ergibt sich aus der Integration der durch eine Verzerrung  $\eta$  aus Gleichung (2.2) verursachten Suszeptibilitätsänderung über eine Übergitterperiode  $d_{\text{SL}}$ :

$$\mathbf{R}_{\text{ZF}} \propto \int_0^{d_{\text{SL}}} \frac{\partial \chi}{\partial \eta} \cdot \eta(z) \, dz. \quad (2.53)$$

Die Verzerrung bei zonengefalteten Phononen mit  $q = 0$  ist bezüglich der Halbierungsebene einer Übergitterperiode, z. B. bei  $z = -d_{\text{B}}/2$  oder  $z = d_{\text{A}}/2$  in Abbildung 2.4 (a),

entweder gerade entsprechend  $u_1$  oder ungerade entsprechend  $u_2$  in Abbildung 2.4 (a). Bei ungeraden Verzerrungen verschwindet der Raman-Tensor nach Gleichung (2.53), die ungeraden zonengefalteten Moden sind folglich nicht Raman-aktiv [80].



---

Experimentelle Methoden und Proben

---

### 3.1. Verwendete Probenstrukturen

Die in dieser Arbeit untersuchten GaN-basierten Heterostrukturen wurden mittels metallorganischer chemischer Gasphasenepitaxie<sup>1</sup> (MOCVD) gewachsen. Dabei werden die chemisch gebundenen Gruppe-III-Metalle und Ammoniak mit Hilfe eines Trärgases, meistens Stickstoff oder Wasserstoff, zum Substrat gebracht [81]. Durch die hohe Temperatur des Substrats von bis zu 900°C zersetzen sich die Ausgangsstoffe, sodass sich eine Schicht des gewünschten Halbleiters auf dem bereits bestehenden im Falle der Homoepitaxie gleichartigen oder im Falle der Heteroepitaxie fremdartigen Kristall abscheidet. Durch die relativ schnelle Wachstumsrate von  $\sim 4 \mu\text{m/s}$  bei GaN eignet sich dieser Prozess gut für industrielle Anwendungen [82].

Die in dieser Arbeit untersuchte AlGaIn/GaN-Übergitterstruktur, die in Abbildung 3.1 (a) skizziert ist, wurde auf einen 2-Zoll Saphir Wafer mit einer  $3,8 \mu\text{m}$  dicken GaN Pufferschicht gewachsen. Sie besteht aus 60 Perioden von jeweils  $3 \text{ nm}$  dicken GaN Quantenfilmen und  $2 \text{ nm}$  dicken  $\text{Al}_{0,18}\text{Ga}_{0,82}\text{N}$  Barrieren. Letztere sind mit einer Konzentration von  $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$   $n$ -dotiert. Daraus ergibt sich eine zweidimensionale Elektronenkonzentration pro Quantenfilm von  $n_{\text{dot}} = 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . Ein Teil des Wafers wurde mit Siliziumnitrid (SiN) mit einer Dicke von  $43 \text{ nm}$  passiviert.

Zusätzlich steht eine Nitrid-basierte MQW-Struktur<sup>2</sup> zur Verfügung, die aus vier  $3,5 \text{ nm}$  dicken  $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{N}$  Quantenfilmen separiert durch  $7 \text{ nm}$  dicke GaN Barrieren besteht, skizziert in Abbildung 3.1 (b). Sowohl die Barrieren als auch die Quantenfilme sind nominell undotiert. Diese Probe wurde ebenfalls mittels MOCVD auf eine  $1,5 \mu\text{m}$  dicke GaN-Pufferschicht gewachsen.

Die GaAs-basierten Proben wurden mittels Molekularstrahlepitaxie<sup>3</sup> (MBE) auf  $n$ -dotierte GaAs Substrate mit einer Gesamtdicke von  $350 \mu\text{m}$  gewachsen. Bei dieser Technik werden Molekularstrahlen der Verbindungskomponenten im Ultrahochvakuum auf die erhitzte und rotierende Probe gerichtet und dort abgeschieden. Da das Wachstum nur durch die Teilchenflussdichte der Molekularstrahlen und der Reaktionen an der Oberfläche beeinflusst wird, erlaubt diese Technik eine äußerst genaue Kontrolle der Schichtdicken, Zusammensetzung und Reproduzierbarkeit der Atomlagen [81].

In Abbildung 3.1 (c) sind die Parameter der GaAs-basierten Übergitterstrukturen skizziert. Sie bestehen aus 70 Perioden von  $9,7 \text{ nm}$  GaAs Quantenfilmen und  $1,5 \text{ nm}$  AlAs Barrieren, auf die eine  $55 \text{ nm}$  dicke  $n$ -dotierte GaAs-Deckschicht gewachsen wurde. Die

---

<sup>1</sup>engl.: MOCVD = metal-organic chemical vapour deposition

<sup>2</sup>engl.: MQW = multi-quantum well

<sup>3</sup>engl.: MBE = molecular beam epitaxy

$n$ -Dotierung der Quantenfilme von  $6 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$  sorgt für eine zweidimensionale Ladungsträgerdichte von  $6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$  pro Quantenfilm. Es existieren zwei Proben, die in [100]- und [111]-Richtung gewachsen wurden.

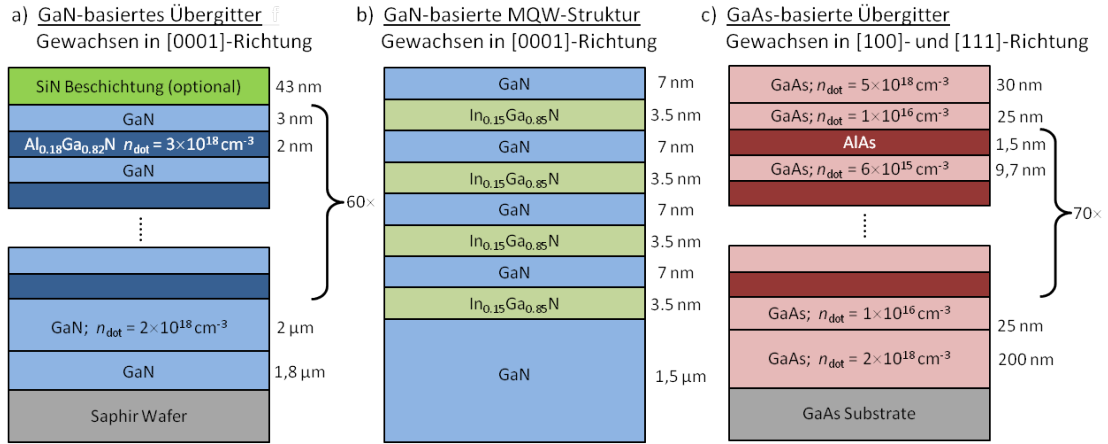


Abbildung 3.1.: Übersicht über die in dieser Arbeit verwendeten Strukturen. (a) GaN-basierte Übergitterstruktur, bei dem ein Teil des Wafers mit SiN passiviert ist, (b) GaN-basierte MQW-Struktur, (c) GaAs-basierte Übergitterstrukturen, von denen jeweils eine in [100]- und eine in [111]-Richtung gewachsen wurden.

Zusätzlich wurde für einige Vergleichsmessungen reines GaN Volumenmaterial verwendet, welches während des Wachstumsprozesses nominell undotiert ist. Auch undotiertes GaN ist mit einer Ladungsträgerkonzentration von bis zu  $10^{16} \text{ cm}^{-3}$   $n$ -dotiert, was durch Leerstellen von Stickstoffatomen oder Restfremdatome wie Silizium oder Sauerstoff verursacht wird [83].

## 3.2. Messaufbauten zur Untersuchung der Photolumineszenz

Für die Untersuchung der im Abschnitt 3.1 vorgestellten Proben stehen mehrere Messaufbauten zur Verfügung, die in den folgenden beiden Abschnitten erläutert werden. Diese unterteilen sich in Experimente basierend auf PL-Messungen im ersten Abschnitt und in Anrege-Abfrage-Messungen zur Analyse der ultraschnellen Ladungsträger- und Gitterdynamik im zweiten Abschnitt.

### 3.2.1. Zeitaufgelöste Messung der Photolumineszenz

Zuerst wird der Aufbau zur zeitaufgelösten Messung der Photolumineszenz<sup>4</sup> (TRPL) skizziert. Hierbei wird die Probe mit ultrakurzen Lichtimpulsen angeregt, siehe grün hinterlegter Bereich in Abbildung 3.2, und anschließend das ausgesendete Lumineszenzlicht spektral und zeitlich anhand einer Kombination aus Monochromator und Streak-Kamera analysiert, siehe rot hinterlegter Bereich in Abbildung 3.2.

Die Quelle für ultrakurze Lichtimpulse ist ein modengekoppelter Titan:Saphir Oszillator (Spectra Physics Tsunami). Das aktive Medium besteht aus  $\text{Ti}^{3+}$ -Ionen in einem Saphirkristall ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Das optische Pumpen geschieht über einen frequenzverdoppelten diodengepumpten Nd:YVO<sub>4</sub> Dauerstrichlaser (Spectra Physics Millennia X) bei 532 nm. Die Ein- und Austrittsflächen des Saphirkristalls sind zur Reflexionsminimierung im Brewster-Winkel geschliffen, sodass das Laserlicht linear polarisiert ist.

Der Oszillator erzeugt bei einer Wiederholungsrate von 80 MHz Impulse mit einer zeitlichen Länge von 80 fs. Durch die Verschiebung eines Spalts, der sich zwischen zwei Prismen im Resonator befindet, kann die gewünschte zentrale Wellenlänge des Impulsspektrums ausgewählt werden. Somit lassen sich die Laserimpulse bei einer spektralen Halbwertsbreite von 20 nm (45 meV) zwischen 720 nm (1,72 eV) und 850 nm (1,46 eV) durchstimmen.

Um GaN in einem PL-Experiment direkt über Interbandabsorption anregen zu können, sind Photonenenergien oberhalb von 3,42 eV nötig. Hierfür ist die Erzeugung der dritten Harmonischen der Emission des Titan:Saphir Oszillators notwendig. Wie in Abbildung 3.2 im Kasten „Anregung: Dritte Harmonische“ dargestellt, wird hierfür zuerst die Fundamentale ( $\omega_0$ ) auf einen Kristall aus Bariumborat (BBO) fokussiert. Die Polarisation der erzeugten zweiten Harmonischen ( $\omega_1 = 2\omega_0$ ) steht senkrecht auf der der Fundamentalen. Für die anschließende Summenfrequenzerzeugung beider Strahlen wird zuerst über dichroitische Spiegel die Fundamentale und die zweite Harmonische getrennt, um den zeitlichen Überlapp über einen Verzögerungstisch herzustellen. Dabei wird mit einer  $\lambda/2$ -Platte auch die Polarisation der Fundamentalen gedreht. Die nun parallel polarisierten Laserimpulse erzeugen in einem weiteren BBO-Kristall mit Typ 1 Phasenanpassung die dritte Harmonische ( $\omega_2 = \omega_0 + \omega_1 = 3\omega_0$ ). Fundamentale und zweite Harmonische werden anschließend über dichroitische Filter herausgefiltert. Aus einer gemittelten Leistung von 1,8 W des Titan:Saphir Oszillators bei 800 nm entsteht so eine maximale Leistung von 30 mW bei 266 nm, die auf einen Anregungsfleck mit einem Durchmesser von 100  $\mu\text{m}$

<sup>4</sup>engl.: *TRPL = time-resolved photoluminescence*

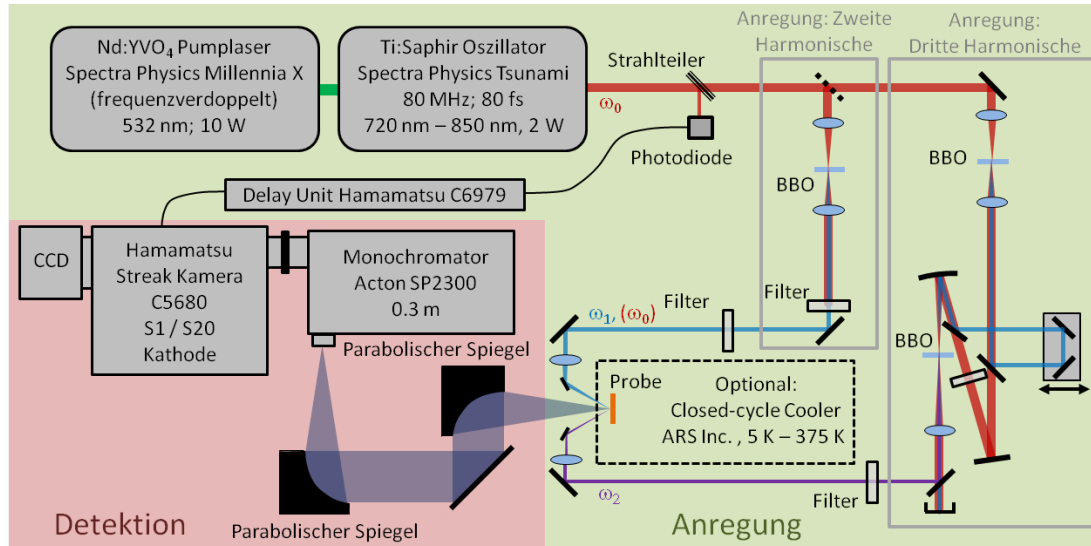


Abbildung 3.2.: Schematischer TRPL-Aufbau. Anregung im grün hinterlegten Bereich: ein modengekoppelter Titan:Saphir Oszillator dient als Quelle ultrakurzer Lichtimpulse, die wahlweise durch Frequenzverdopplung (zweite Harmonische) oder Frequenzverdopplung in Verbindung mit Summenfrequenzbildung (dritte Harmonische) GaAs, bzw. GaN direkt anregen können. Durch Herausnahme der optischen Elemente zur Erzeugung der zweiten Harmonischen kann wahlweise auch mit der Fundamentalen angeregt werden. Detektion im rot hinterlegten Bereich: die PL wird zuerst anhand eines Monochromators spektral zerlegt und anschließend mit einer Streak-Kamera zeitlich analysiert.

(FWHM) fokussiert werden.

Über einen klappbaren Spiegel können Proben auch mit der zweiten Harmonischen über einen zweiten Strahlengang mit einer maximalen gemittelten Leistung von 300 mW angeregt werden. Da die Spiegel in diesem Strahlengang sowohl für die zweite Harmonische als auch für die Fundamentale hochreflektierend sind, wird durch die Herausnahme des BBO-Kristalls zusätzlich eine Anregung mit der Fundamentalen ermöglicht. Der Durchmesser des Anregungsflecks bei den Anregungswellenlängen von 800 nm (1,55 eV) und 400 nm (3,1 eV) beträgt 120  $\mu\text{m}$  (FWHM).

Für temperaturabhängige Messungen kann die Probe in den Kühkopf (DE-204) eines Closed Cycle Cooler von Advanced Research Systems Inc. montiert werden, der Temperaturen zwischen 5 K und 375 K erlaubt. Hierbei wird Helium komprimiert und über die anschließende Expansion im Kühkopf der Probenhalter gekühlt. Die exakte Einstellung der Probentemperatur geschieht über eine elektrische Heizung am Probenhalter [84]. Eine Turbomolekularpumpe (Varian TPS-compact) sorgt in der Probenkammer für ein Vakuum von  $10^{-8}$  mbar.

Die Detektion geschieht über eine Kombination eines Monochromators mit einer Streak-Kamera und ermöglicht sowohl eine spektrale als auch eine zeitliche Analyse der PL, siehe rot hinterlegter Bereich der schematischen Abbildung 3.2. Das PL-Signal wird auf den Eingangsspalt eines Acton SP2300 0,3 m Monochromators fokussiert und spektral zerlegt. Die zeitaufgelöste Detektion des Lumineszenzlichts wird anschließend durch eine Streak-

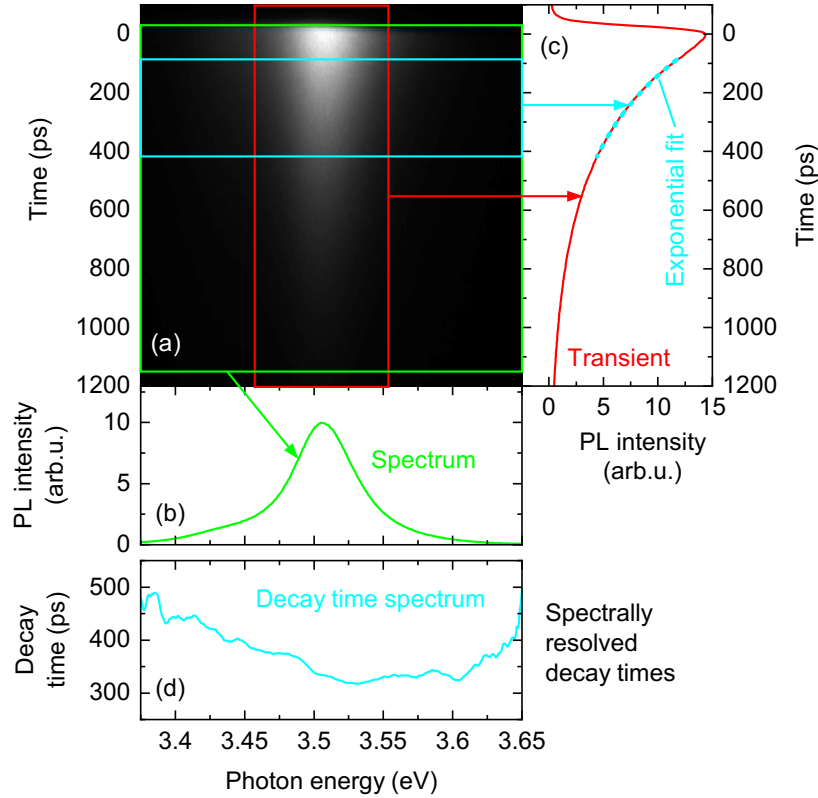


Abbildung 3.3.: (a) Zweidimensionale Darstellung der Ergebnisse eines TRPL-Experiments. (b) Die Integration über einen gewählten Zeitbereich ergibt das Spektrum, (c) über einen gewählten spektralen Bereich die transiente PL-Intensität. (d) Das Anpassen einer exponentiellen Zerfallsfunktion an die jeweiligen spektralen Positionen in einem gewählten Zeitbereich ergibt das gemessene Zerfallszeitspektrum.

Kamera C5680 von Hamamatsu im Synchro-Scan Modus ermöglicht.

Die spektral zerlegte PL trifft durch einen Spalt auf die Photokathode der Streak-Kamera und löst Elektronen heraus, welche anschließend beschleunigt und in einem hochfrequenten elektrischen Feld senkrecht zu ihrer Propagationsrichtung abgelenkt werden. Die Frequenz und Phase des Felds ist über eine Photodiode und eine Verzögerungseinheit (Hamamatsu C6979 Delay Unit) mit der Wiederholungsrate des Titan:Saphir Oszillators synchronisiert. Die nun zu verschiedenen Zeiten unterschiedlich weit ausgelenkten Elektronen werden durch eine Multi-Channel-Plate verstärkt und treffen auf einen Phosphorschirm [85]. Die erzeugten Photonen werden anschließend mit einer CCD-Kamera detektiert. Ein solches Abbild der spektral und zeitlich aufgelösten PL ist in Abbildung 3.3 (a) exemplarisch dargestellt.

Es stehen zwei Streak-Kameras mit je einer S1 oder S20 Photokathode zur Verfügung, die aufgrund ihrer unterschiedlichen Sensitivität für den roten/NIR Spektralbereich von GaAs oder für den blauen Spektralbereich von GaN eingesetzt werden. Die zeitliche und spektrale Auflösung des gesamten Systems hängt von der Wahl des Zeitbereichs und des Gitters im Monochromator ab. In den für diese Dissertation durchgeführten Experimenten liegt diese bei 10 ps und 2 nm.

### 3.2.2. Photolumineszenzmessung mit gepulster Anregung und zeitintegrierter Detektion

Die optische Anregung in diesem Aufbau geschieht mittels eines diodengepumpten Ytterbium-basierten Faserlasers (Coherent Monaco) mit einer Wiederholungsrate von 1 MHz. Dieser pumpt mit  $40\ \mu\text{J}$ -Impulsen bei 1035 nm einen optisch-parametrischen Verstärker<sup>5</sup> (OPA) (Light Conversion Opera-F). Dies ermöglicht ein Durchstimmen der Wellenlänge der Laserimpulse in einem Wellenlängenbereich von 650 bis 900 nm. Die Impulse werden komprimiert und frequenzverdoppelt, sodass Laserimpulse mit einer zeitlichen Dauer von 50 fs zur Verfügung stehen, siehe Abbildung 3.4.

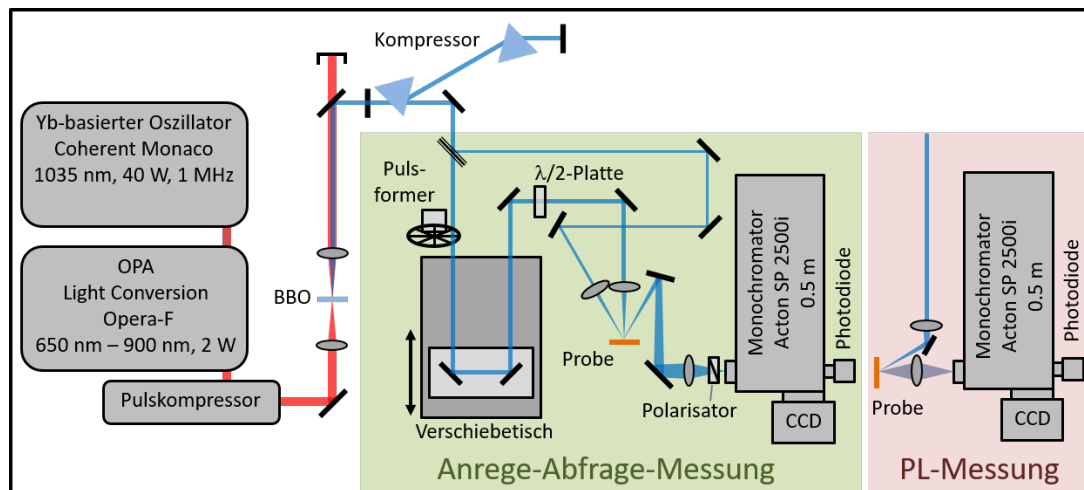


Abbildung 3.4.: Die Kombination von Yb-basiertem Oszillator, OPA, Impulskompressoren und der Erzeugung der zweiten Harmonischen wird sowohl für gepulste Messungen der Photolumineszenz (rot hinterlegt), sowie für entartete Anregungs-Abfrage-Spektroskopie in einem Spektralbereich von 325 bis 450 nm verwendet (grün hinterlegt). Die Detektion der PL-Spektren geschieht mittels einer CCD-Kamera, die der Anregungs-Abfrage-Spektroskopie über eine Photodiode.

Bei PL-Messungen werden Laserimpulse mit einer Wellenlänge von 335 nm (3,7 eV) und einem Anregungsfleck von 30 nm (FWHM) auf die Probe fokussiert, siehe rot hinterlegte Teilgrafik in Abbildung 3.4. Das PL-Signal wird anschließend in einem Acton SP2500i 0,5 m Monochromator spektral zerlegt und mit einer Andor Newton CCD-Kamera detektiert.

<sup>5</sup>engl.: OPA = optical-parametric amplifier

### 3.2.3. Ortsaufgelöste konfokale Spektroskopie

In der konfokalen Spektroskopie werden sowohl der Strahlengang des Anregungslasers als auch der der Detektion derart durch dasselbe Mikroskopobjektiv geführt, dass die Fokusse beider Strahlengänge auf der Probe zusammentreffen, siehe Abbildung 3.5. Durch das Abrastern der Probe kann die Ortsabhängigkeit der PL-Spektren gemessen werden.

Als Laserquelle dient die 325 nm (3,81 eV) Linie eines Helium-Cadmium-Lasers (Kimmon IK5751I-G). Ein Mikroskopobjektiv (Olympus BX51WI) fokussiert die Anregung auf einen Fleck von 3  $\mu\text{m}$  Durchmesser (FWHM) und nimmt auch gleichzeitig die PL von derselben Fläche auf. Für die spektrale Analyse der PL steht ein 0.75 m Monochromator Acton TriVista mit einem flüssig-Stickstoff gekühlten CCD-Detektor zur Verfügung.

Die Montage der Probe auf einem Verschiebetisch (Märzhäuser), der in alle drei Raumrichtungen computergesteuert mit einer Genauigkeit von 3  $\mu\text{m}$  verschoben werden kann, ermöglicht das Abrastern der Probe.

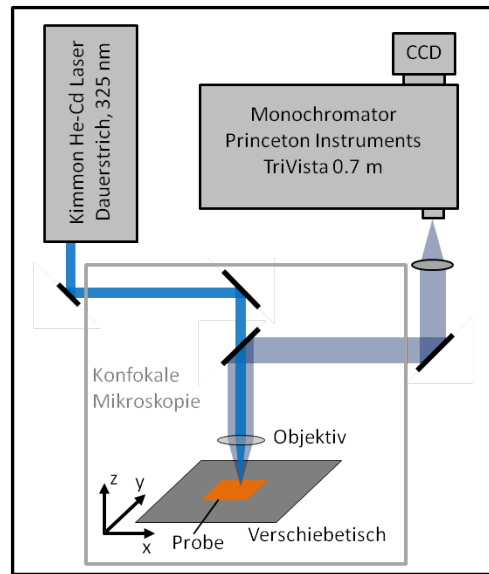


Abbildung 3.5.: Schematischer Versuchsaufbau der Photolumineszenzuntersuchung mittels konfokaler Spektroskopie.

### 3.2.4. Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie

Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie<sup>6</sup> (PLE) ist eine weitere Technik der PL-Spektroskopie, bei der die Anregungswellenlänge durchgestimmt und gleichzeitig die Intensität der PL bei einer festen Wellenlänge (= Monitorwellenlänge) aufgezeichnet wird [78]. Für die Messung wird ein handelsüblicher Messaufbau (Fluorolog-3-22 Spectrofluorometer) von Horiba Scientific verwendet, welcher aus zwei Doppelmonochromatoren, einer Lichtquelle, einem Detektor, sowie einer Probenkammer besteht.

Der erste Doppelmonochromator stimmt die Wellenlänge des Emissionslichts einer Xenonlampe durch und fokussiert dieses mit einem sphärischen Spiegel auf die Probe. Mit dem zweiten Doppelmonochromator wird die Wellenlänge der PL-Emission mit einer Bandbreite von 14 nm ausgewählt und auf einen Photomultiplier (Horiba FL-1073) fokussiert. Um die nicht ganz gleichförmige Emission der Xenonlampe zu korrigieren, wird die Anregungsintensität hinter dem ersten Doppelmonochromator mit einer Photodiode gemessen und mit der gemessenen PL-Intensität ins Verhältnis gesetzt.

Bei PLE-Messungen spielen drei Prozesse eine Rolle: Absorption des Anregungslichts mit einer bestimmten Wellenlänge, Transfer der erzeugten Ladungsträger in tiefer gelegene Zustände und anschließende Rekombination unter Aussendung des Lumineszenzlichts. Die

<sup>6</sup>engl.: *PLE = photoluminescence excitation spectroscopy*

Monitorwellenlänge, d. h. die spektrale Position der gemessenen PL-Emission, bestimmt die Natur der strahlenden Übergänge. Da das PL-Signal maßgeblich von der Absorption abhängt, kann die PLE-Spektroskopie Absorptionseigenschaften ermitteln, die durch Transmissionsmessungen nicht zugänglich sind [78]. Beispiele hierfür sind Quantenpunktstrukturen oder Strukturen, bei denen eine Entfernung des undurchsichtigen Substrats nicht möglich ist.



### 3.3. Messaufbauten zur Untersuchung ultraschneller Prozesse

Da ultraschnelle Prozesse, d. h. Prozesse auf einer Zeitskala schneller als eine Pikosekunde, mit herkömmlichen elektronischen Messmethoden zeitlich nicht aufgelöst werden können, werden diese in dieser Arbeit mittels entarteter Anrege-Abfrage-Spektroskopie<sup>7</sup> untersucht. Die Impulszüge eines Femtosekundenlasers werden dabei in zwei Strahlengänge aufgeteilt. Die Probe wird von Laserimpulsen des einen Impulszugs angeregt und in einen Nichtgleichgewichtszustand gebracht, der anschließend von einem zeitlich verzögerten Impuls des zweiten Impulszugs abgefragt wird. Zur zeitlichen Auflösung wird der Gangunterschied zwischen dem Anrege- und dem Abfrageimpuls über einen linearen Verschiebetisch variiert.

#### 3.3.1. Anrege-Abfrage-Experimente im sichtbaren Bereich mit spektraler Auflösung

Die in Abschnitt 3.2.2 erläuterte Kombination aus Ytterbium-basiertem Faserlaser, OPA, Erzeugung der zweiten Harmonischen sowie Kompression der Impulse dient auch als Quelle ultrakurzer Laserimpulse für Anrege-Abfrage-Experimente. Der schematische Aufbau ist im grün hinterlegten Teil der Abbildung 3.4 skizziert.

Mit Hilfe des OPAs lässt sich ein relativ weiter Spektralbereich von 325 nm bis 450 nm abdecken, der die Untersuchung ultraschneller Prozesse in einem Energiebereich um die Bandkante von GaN ermöglicht. Gleichzeitig sorgt die verglichen mit dem Titan:Saphir Oszillator geringe Wiederholungsrate von einem Megahertz für hohe Impulsenergien bei gleichzeitig niedriger Probenerwärmung, sodass hohe Ladungsträgerdichten erreicht werden können. Die Messungen der GaN-basierten Übergitterproben wurden in Reflexionsgeometrie durchgeführt, da die GaN-Pufferschicht hinter dem Übergitter eine Transmission im relevanten Spektralbereich verhindert.

Die Impulslänge auf der Probe beträgt 50 fs, ermittelt durch einen Autokorrelator (APE PulseCheck), was eine zeitliche Auflösung des Anrege-Abfrage-Experiments von 70 fs ermöglicht. Das Intensitätsverhältnis zwischen den linear polarisierten Abfrage- und Anregeimpulsen beträgt 1:10, wobei die Polarisation der Anregeimpulse durch eine  $\lambda/2$ -Platte um  $90^\circ$  gedreht wird und somit senkrecht auf der Polarisation der Abfrageimpulse steht. Die Anregeimpulse fallen senkrecht auf die Probe, während der Strahlengang der Abfrageimpulse einen Winkel zur Flächennormalen von  $30^\circ$  aufweist. Die maximale zeitlich gemittelte Leistung auf der Probe beträgt 24 mW, was für maximale Impulsenergien von 24 nJ sorgt.

Vor dem Eintrittsspalt des Monochromators sorgt ein Polarisator, der gekreuzt zur Polarisation der Anregeimpulse ist, für das Herausfiltern des gestreuten Lichts der Anregeimpulse. Auch der Winkel zwischen Anrege- und Abfrageimpulse sorgt für eine räumliche Separierung und somit für einen geringen Beitrag des Anregeimpulses zum detektierten Signal. Die Abfrageimpulse werden in einem 0,5 m Monochromator spektral zerlegt und anschließend mit einer Photodiode am Austrittsspalt mit einer Auflösung von 2 nm (20 meV) gemessen.

<sup>7</sup>Sehr häufig wird auch der im deutschen geläufige englische Begriff der *Pump-Probe Spectroscopy* verwendet.

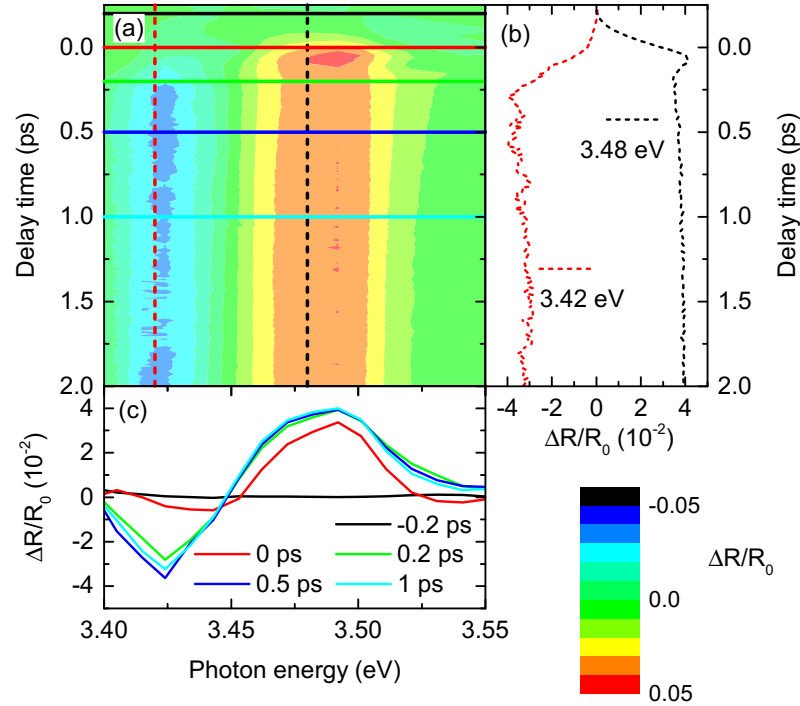


Abbildung 3.6.: (a) Zweidimensionale Darstellung der durch den Anregeimpuls induzierten Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$ , (b) zeitaufgelöstes Verhalten der Reflektivitätsänderung (Transienten) bei verschiedenen den gestrichelten Linien in (a) entsprechenden spektralen Positionen. (c) Spektren der Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Verzögerungszeiten (transiente Spektren), die dazugehörigen Verzögerungszeiten werden durch durchgezogene Linien in (a) angezeigt.

Der Impulszug zur Anregung der Probe wird mit einem mechanischen Chopper moduliert. Dadurch lässt sich die Reflektivität der Probe in einem durch den Anregeimpuls angeregten Zustand mit der Reflektivität in einem unangeregten Zustand vergleichen. Die Analyse erfolgt mit einer Digital-Analog-Konverterkarte (M4i.4421-x8 von Spectrum Instrumentation), die das Signal der an der angeregten und unangeregten Probe reflektierten Abfrageimpulse in Relation setzt. Dabei wird die anregungsinduzierte Reflektivitätsänderung ermittelt:  $\Delta R/R_0 = (R - R_0)/R_0$ , wobei  $R$  die Reflektivität mit und  $R_0$  die Reflektivität ohne Anregung ist. Während der Messung werden die einzelnen Wellenlängen innerhalb der Impulsbreite abgerastert. In Verbindung mit der Zeitauflösung können die Ergebnisse zweidimensional wie in Abbildung 3.6 (a) dargestellt werden. Profile zeigen zeitaufgelöste Daten bei einer bestimmten Photonenenergie (Transienten in Abb. 3.6 (b)) oder Spektren der Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Verzögerungszeiten (transiente Spektren in Abb. 3.6 (c)).

Die naheliegende direkte Messung transienter Spektren mit Hilfe der CCD-Kamera ist wegen der zu geringen Auslesegeschwindigkeit nicht möglich, weshalb auf das oben beschriebene Abrastern der Wellenlängen und Messung per Photodiode zurückgegriffen wird.

### 3.3.2. Anrege-Abfrage-Experimente im IR-Bereich

In Abbildung 3.7 ist der Versuchsaufbau des Anrege-Abfrage-Experiments im Infrarotbereich skizziert. Die Quelle ultrakurzer Laserimpulse ist der in Abschnitt 3.2.1 behandelte Titan:Saphir Oszillator, der auch für TRPL-Messungen verwendet wird.

Auch hier sind analog zum im Abschnitt 3.3.1 beschriebenen Aufbau die Polarisation der Anregeimpulse mit einer  $\lambda/2$ -Platte gedreht, sodass die Polarisationen von Anrege- und Abfrageimpuls senkrecht aufeinander stehen. Der Winkel zwischen beiden Strahlengängen beträgt  $15^\circ$ . Durch diese räumliche Separierung in Kombination mit dem Polarisator vor der Silizium-basierten Photodiode (Thorlabs DET36A), der senkrecht zur Polarisation des Anregeimpuls steht, wird zusätzliches Streulicht des Anregeimpulses auf der Photodiode herausgefiltert.

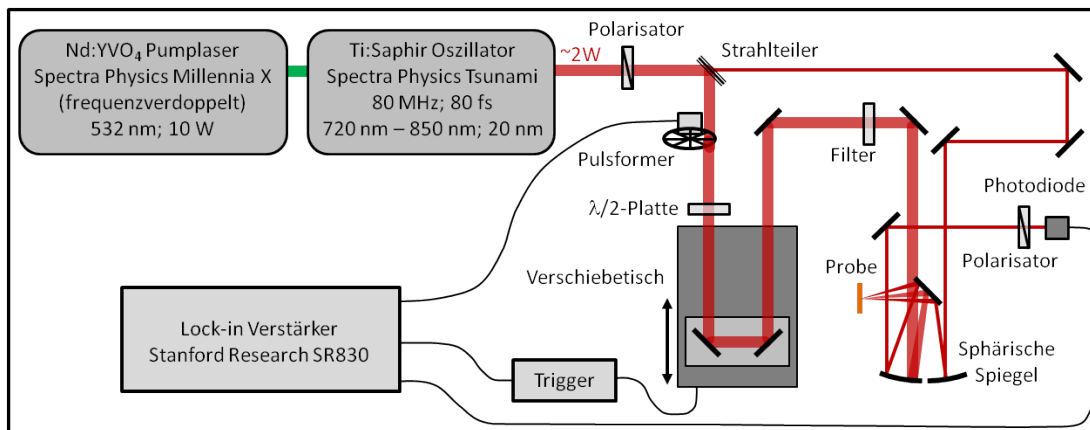


Abbildung 3.7.: Schematischer Aufbau des Anrege-Abfrage-Experiments zur Untersuchung der GaAs-basierten Übergitter im IR-Spektralbereich.

Die Modulierung der Anregung mit einem mechanischen Chopper bei einer Frequenz von 1630 Hz ermöglicht differentielle Reflektivitätsmessungen mit einem Lock-In Verstärker (Stanford Research SR830), sodass die durch den Anregeimpuls induzierte Reflektivitätsänderung ermittelt wird.

Bei der Durchführung der Messung kann zwischen zwei Messregimen unterschieden werden. Im *Slow Mode* wird jeweils ein Messwert pro Position des Verschiebetisches aufgenommen. Im zweiten Messregime, das in dieser Arbeit als *Fast Mode* bezeichnet wird, ist die Messwertausgabe des Lock-in-Verstärkers mit dem linearen Verschiebetisch im Strahlengang der Anregeimpulse derart synchronisiert, dass während einer konstanten Bewegung des Verschiebetisches kontinuierlich Messdaten aufgenommen werden. Dies ermöglicht neben der Aufnahme von zusätzlichen Messwerten eine Verkürzung der Messzeit, da die Totzeit während des Verschiebens des Tisches zur neuen Position entfällt. Die Zeitauflösung ist durch die Kreuzkorrelation von Anrege- und Abfrageimpuls auf der Probe limitiert. Die Anstiegszeit der gemessenen Transienten beträgt 120 fs, was näherungsweise die Impulslänge der Anrege- und Abfrageimpulse darstellt.

Um ein bestmögliches Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erreichen, wurden 40 Durchgänge im *Fast Mode* aufgenommen, der zeitliche Jitter zwischen den einzelnen Durchgängen kompensiert und anschließend die einzelnen Durchgänge gemittelt. Abhängig von der Anrege-

impulsenergie ergibt sich ein Rauschpegel in der Größenordnung von  $10^{-6}$ .

Der Durchmesser des Anregungsflecks beträgt sowohl für den Anrege- als auch für den Abfrageimpuls  $70\text{ }\mu\text{m}$  (FWHM). Die Impulsenergie des Anregeimpulses wird bis zu einer maximalen Energie von  $9,5\text{ nJ}$  variiert, während die Impulsenergie des Abfrageimpulses konstant bei  $0,09\text{ nJ}$  gehalten wird. Die Proben wurden rückseitig mit Wärmeleitpaste bestrichen und mit einem Kunststoffring auf eine Kupferplatte geklemmt, die auch gleichzeitig als Wärmesenke dient. Alle Messungen an diesem Versuchsaufbau wurden bei Raumtemperatur durchgeführt.

---

## Ultraschnelle Ladungsträgerkinetik in AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> Übergittern

---

Eine höhere Aluminiumkonzentration in ternären AlGa<sub>N</sub>-Mischkristallen erhöht die Bandlücke und ermöglicht die Verschiebung des Emissionsspektrums optoelektronischer Bauelemente in den ultravioletten Spektralbereich. Dadurch ergeben sich neue Anwendungsmöglichkeiten wie Wasserentkeimung [86], Sensorik [87], UV-Härtung von Polymeren [88] und im medizinischen Bereich [89]. Die externe Quanteneffizienz solcher LEDs im UV-Bereich ist mit unter einem Prozent im UV-C-Bereich [90], bzw. unter zehn Prozent (UV-B und UV-A) [91] signifikant geringer als InGa<sub>N</sub>-basierte LEDs im sichtbaren Bereich. Strukturelle Defekte wie Punktdefekte und eine hohe Versetzungsdichte stellen dabei die limitierenden Faktoren dar [92, 93]. Dies beeinflusst sowohl die optischen Eigenschaften als auch die Transporteigenschaften der Ladungsträger [94, 95]. Ferner ergänzt die hohe Dichte an Versetzungen und Fluktuationen in der Kristallzusammensetzung [96] und Schichtdicken [24] in Ga<sub>N</sub>-basierten Heterostrukturen die Kontinuumszustände der Valenz- und Leitungsbänder um zusätzliche Zustände in der Bandlücke. Diese vielfältigen Defekte beeinflussen die Rekombinationsprozesse durch zusätzliche Rekombinationskanäle und tiefe Störstellen [23], sowie die Relaxation der angeregten Ladungsträger auf der ultraschnellen Zeitskala.

Arbeiten zur Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik in Nitrid-basierten Proben beschränken sich bisher auf Messungen an Ga<sub>N</sub>-Volumenmaterial [97–102] und InGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub>-MQW-Strukturen [103]; aluminiumhaltige Heterostrukturen standen bisher weniger im Fokus der Forschung. Aus diesem Grund wird eine exemplarische AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub>-Übergitterstruktur untersucht, die Parameter vergleichbar mit denen von Heterostrukturen in optoelektronischen Bauelementen hat. Zuerst wird die Charakterisierung des Übergitters mit spektroskopischen Methoden diskutiert. Hierbei liegt das Augenmerk auf PL-Messungen, da diese sensitiv für sättigbare nichtstrahlende Rekombinationszentren sind. Des Weiteren wird mittels TRPL die Trägerdynamik auf einer Zeitskala bis 2 ns leistungs- und temperaturabhängig untersucht. Zur Verhinderung von Degradationseffekten wurden Teile der Probe mit Siliziumnitrid (Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>) passiviert und sein Einfluss auf die optischen Eigenschaften und die Langzeitstabilität mit spektroskopischen Methoden untersucht. Anschließend werden die Messungen mittels spektral aufgelöster Anrege-Abfrage-Spektroskopie diskutiert, die zur Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerdynamik nahe der Bandkante dienen.

## 4.1. Spektroskopische Analyse des GaN-basierten Übergitters

### 4.1.1. Charakterisierung des GaN-basierten Übergitters

#### Experimentelle Daten

In Abbildung 4.1 sind normierte PL-Spektren des beschichteten AlGaIn/GaN-Übergitters bei Raumtemperatur dargestellt. Hierbei wurde in der Teilgrafik (a) mit dem Dauerstrichlaser bei 3,81 eV des im Abschnitt 3.2.3 erläuterten Messaufbaus angeregt. Die Spektren in Abbildung 4.1 (b) wurden mit gepulster Anregung bei 3,7 eV zeitintegriert gemessen. Der Aufbau dieser Messung ist in Abschnitt 3.2.2 erläutert. Die Anregungsdichte bei der Messung überspannt mit einer gemittelten Anregungsdichte von  $5,4 \text{ mW cm}^{-2}$  bis  $9,3 \text{ kW cm}^{-2}$  mehrere Größenordnungen. In allen Spektren lassen sich drei Linien erkennen: Die Hauptlinie A bei 3,53 eV, die Linie B ca. 65 meV unterhalb der Hauptlinie und eine dritte Komponente, die sich um weitere 20 meV darunter befindet. Mit steigender Anregungsdichte nimmt die Intensität der Linie B relativ zur Linie A zu. Zusätzlich beobachtet man mit steigender Anregungsdichte eine Rotverschiebung von 1,3 meV/Dekade, was mit der zu erwartenden Bandlückenrenormierung bei Ladungsträgerdichten pro Quantenfilm zwischen  $10^9 \text{ cm}^{-2}$  und  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  übereinstimmt [104, 105].

In Abbildung 4.1 (c) und (d) sind Ergebnisse eines PL-Scans zur Untersuchung der Probenhomogenität mit dem in Abschnitt 3.2.3 beschriebenen Aufbau dargestellt. Hierbei wurden 2000 Spektren an Punkten aufgenommen, die sich in einem Abstand von  $5 \text{ }\mu\text{m}$  entlang eines 10 mm langen Pfades über die Probe erstrecken.

Die Position von Peak A an verschiedenen Punkten der Probe variiert um 3,53 eV mit einer Streuung von 3 meV (FWHM), was deutlich geringer als die PL-Linienbreite von 56 meV (FWHM) ist. Folglich ist in dieser Beziehung die Probe sehr homogen. Im Unterschied zur Peakposition zeigt die Intensität deutlich höhere Variationen in Abhängigkeit vom Probenort mit einem Mittelwert von  $2 \times 10^4$  Counts und einer Streuung von 4300 Counts, was einem Fünftel des Messwerts entspricht. Die PL-Intensität und die Peakposition in Abbildung 4.1 (c) sind unkorreliert. Im Unterschied hierzu sind die Intensitäten der Linien A und B in Abbildung 4.1 (d) stark korreliert.

In Abbildung 4.2 (a) sind PL-Transienten der Linie A des beschichteten Übergitters dargestellt, die mit dem in Abschnitt 3.2.1 erläuterten Messaufbau mit einer Anregung von 4,79 eV und bei Raumtemperatur gemessen wurden. Gerade bei geringen Anregungsdichten ist der PL-Verlauf nichtexponentiell. Bei hohen Anregungsdichten nähert er sich einem exponentiellen Zerfall an. In Teilgrafik (b) sind die entsprechenden charakteristischen Zerfallszeiten des schnellen Zerfalls in Abhängigkeit von der Anregungsdichte dargestellt. Die schnelle Komponente des Zerfalls wurde in einem Zeitbereich nach dem Impuls angepasst, in dem der Zerfall bei geringen Anregungsleistungen noch durch einen einzelnen Exponenten beschrieben werden kann. Bei leistungsabhängigen Messungen wurde dieser Bereich auf 50 ps bis 300 ps festgelegt. In Abbildung 4.2 (c) ist die zeitintegrierte PL-Intensität (schwarze Punkte), sowie die maximale Intensität der Transienten (rote Punkte) aus Abbildung 4.2 (a) in Abhängigkeit von der Anregungsdichte aufgetragen. In dem untersuchten Bereich hängt die PL-Intensität superlinear von der Anregungsdichte  $P_{\text{exc}}$  ab. Für die zeitintegrierte PL-Intensität erhält man eine Abhängigkeit proportional

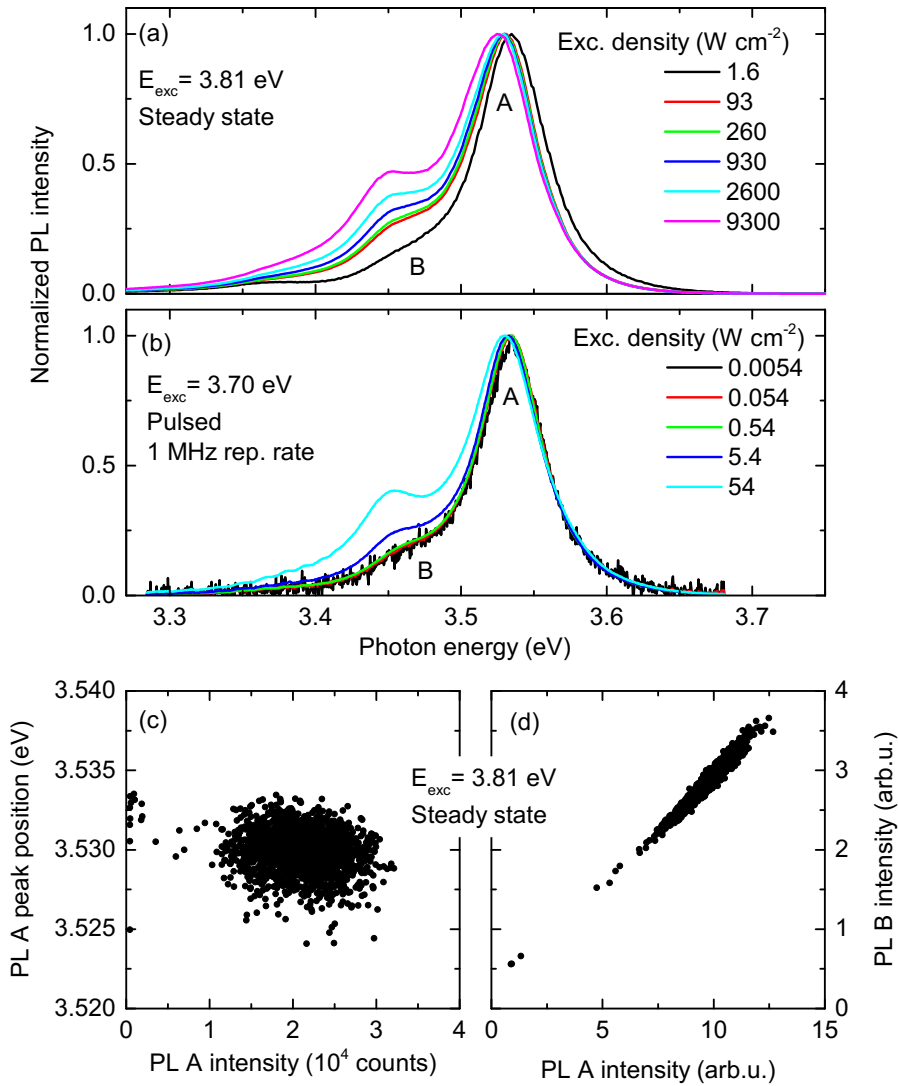


Abbildung 4.1.: PL-Spektren bei Raumtemperatur des AlGaIn/GaN-Übergitters bei verschiedenen Anregungsdichten: (a) Anregung mit einem Dauerstrichlaser bei 3,81 eV. Die berechneten Ladungsträgerdichten pro Quantenfilm liegen zwischen  $n = 5 \times 10^7 \text{ cm}^{-2}$  und  $n = 3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . (b) Anregung mit einem gepulsten Laser bei Photonenenergien von 3,7 eV. Die Leistungsangaben entsprechen den zeitlich gemittelten Anregungsdichten bei einer Wiederholungsrate von einem MHz. Die Ladungsträgerdichten pro Quantenfilm reichen von  $n = 3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$  bis  $n = 3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ . (c) Spektrale Position des PL-Maximums der Linie A in Abhängigkeit von ihrer PL-Intensität bei 2000 verschiedenen Orten auf der Probe bei gleicher Anregungsdichte. (d) Intensität der Linie B in Abhängigkeit von der Intensität der Linie A. Die Daten in (c) und (d) entstammen derselben Messung.

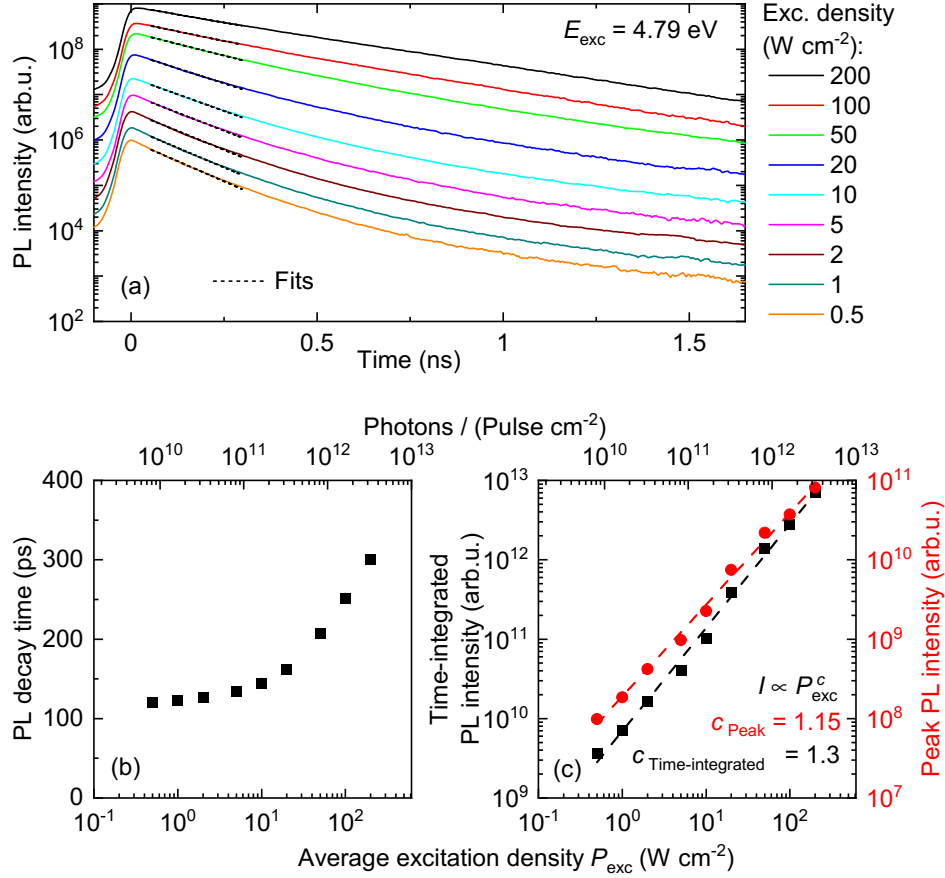


Abbildung 4.2.: (a) Zeitaufgelöste Photolumineszenzdaten der Linie A bei unterschiedlichen Anregungsdichten und einer Anregungsenergie von 4,79 eV. (b) Zerfallszeiten eines exponentiellen Fits zwischen 50 ps und 300 ps der Transienten in (a). (c) Zeitintegrierte PL-Intensität und PL-Intensität des Maximums der Transienten in (a) in Abhängigkeit von der Anregungsdichte. Die gestrichelten Linien entsprechen angepassten Potenzfunktionen mit den entsprechenden Exponenten  $c_{\text{Peak}}$  und  $c_{\text{Time-integrated}}$ .

zu  $P_{\text{exc}}^{1,3}$  und für die maximale PL-Intensität proportional zu  $P_{\text{exc}}^{1,15}$  (gestrichelte Linien in Abbildung 4.2 (c)).

In Abbildung 4.3 (a) ist der über die Linie A spektral integrierte zeitliche Verlauf der PL-Intensität bei verschiedenen Temperaturen zwischen 5 K und 200 K dargestellt. Die zeitlich gemittelte Anregungsdichte betrug  $9 \text{ W cm}^{-2}$ , was zu einer Ladungsträgerdichte von  $n = 2,6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  pro Quantenfilm führt. Die charakteristischen Zerfallszeiten wurden bei temperaturabhängigen Messungen in einem Zeitbereich zwischen 80 ps und 400 ps bestimmt und entsprechen den schwarzen Punkten in Abbildung 4.3 (b). In den folgenden Abbildungen 4.3 (c) und (d) folgt der Anstieg der PL-Intensität bei verschiedenen Photonenenergien. Bei einer Gittertemperatur von  $T_L = 5 \text{ K}$  in (c) ist eine Verzögerung des Anstiegs bei geringeren Photonenenergien innerhalb der Linie A zu beobachten. Bei Raumtemperatur in (d) hingegen ist dies nicht der Fall. In dieser Grafik ist zusätzlich



die PL-Intensität der Linie B eingezeichnet, die einen verzögerten Anstieg zur Linie A zeigt.

In Abbildung 4.4 (a) sind PL-Spektren im Temperaturbereich von 5 K bis 200 K von undotiertem GaN-Volumenmaterial dargestellt. Bei tiefen Temperaturen besteht das Emissionsspektrum aus mehreren Linien. Die zwei prominentesten werden im Folgenden C und D genannt. Unterhalb der Hauptlinie bei 3,465 eV ist eine zusätzliche Schulter bei tiefen Temperaturen zu erkennen, sowie ein weiterer Peak E bei 3,41 eV. In Teilgrafik (b) sind PL-Spektren des AlGaIn/GaN-Übergitters bei gleichen Temperaturen dargestellt. Neben der Hauptlinie A bei 3,55 eV existiert die zweite Emission B ca. 70 meV unterhalb der Hauptemission. Die spektrale Auflösung der PL-Zerfallszeit in einem Bereich von 80-400 ps nach dem Anregungsimpuls ergibt das Zerfallszeitspektrum in Abbildung 4.4 (c).

### Diskussion der experimentellen Daten

Zuerst widmet sich die Diskussion der Herkunft der Linien A und B des AlGaIn/GaN-Übergitters, zu sehen in den Spektren in Abbildung 4.1 (a) und (b) und in 4.4 (b). Hierfür wird die elektronische Minibandstruktur entsprechend Gleichung (2.27) berechnet. In Abbildung 4.5 (a) ist der Leitungs- und Valenzbandverlauf des Übergitters in Wachstumsrichtung eingezeichnet. Für die Berechnung wird eine Bandlückendiskontinuität von 0,375 eV zwischen den  $\text{Al}_{0,18}\text{Ga}_{0,82}\text{N}$ -Barrieren und den GaN-Quantenfilmen mit einer Aufteilung von 66%/34% auf Leitungs- und Valenzband angenommen. Für die effektiven Massen wurde für Elektronen  $m_{e,\text{GaN}}^* = 0,2 m_0$  und  $m_{e,\text{AlGaIn}}^* = 0,24 m_0$  und für schwere Löcher in  $z$ -Richtung  $m_{hh,\text{GaN}}^* = 1,1 m_0$  und  $m_{hh,\text{AlGaIn}}^* = 1,54 m_0$  gewählt [39, 106]. Die Schwerloch- und Leichtlochlöcher in GaN aus Abschnitt 2.3.1 verfügen über gleiche Massen in  $z$ -Richtung, jedoch über verschiedene effektive Massen in  $x$ - und  $y$ -Richtung. Eine Mischung zwischen Schwerloch- und Leichtlochlöchern kann zu indirekten Übergängen zwischen Elektronen und leichten Löchern führen, jedoch kann in GaN das Schwerlochband senkrecht zur Wachstumsrichtung trotzdem parabolisch genähert werden [106]. Da in der Zuordnung der Linien des PL-Spektrums ausschließlich der niedrigste optische Übergang relevant ist, berücksichtigt die Berechnung nur schwere Löcher.

Die resultierende elektronische Minibandstruktur ist in Abbildung 4.5 (b) dargestellt. Unter Beachtung der Auswahlregeln, d. h. es sind nur Übergänge zwischen Subbänder mit gleicher Quantenzahl erlaubt, existiert ein Interbandübergang mit  $E_{\text{SL}}^g = 3,5$  eV. Wegen der hohen Exzitonbindungsenergie in GaN-Quantenfilmen von 37 meV bei einer Quantenfilmdicke von 3 nm [74] basiert die Emissionslinie A hauptsächlich auf der Rekombination von Exzitonen. Ferner wäre aufgrund hoher intrinsischer elektrischer Felder eine Rotverschiebung des Lumineszenzlichts durch den *Quantum-confined Stark effect* (QCSE) zu erwarten. Untersuchungen an vergleichbaren Strukturen mit vergleichbarer Quantenfilmdicke und dickeren Barrieren haben gezeigt, dass die Emissionsenergie aufgrund der Rotverschiebung bei derjenigen des GaN Volumenmaterials liegt [107, 108]. Da eine derartige Rotverschiebung bei geringen Anregungsdichten in Abbildung 4.1 (a) nicht beobachtet wurde, sowie die Photonenenergie der Linie A gut mit dem berechneten niedrigsten Übergang in der Übergitterstruktur übereinstimmt, ist davon auszugehen, dass intrinsische elektrische Felder bei derart dünnen Barrieren eine untergeordnete Rolle spielen.

Der energetische Abstand zwischen der Linie A und Linie B von 65 meV ist geringer als die Energie von LO-Phononen in Wurtzit GaN von 91 meV oder AlN von 113 eV [41, 109], weshalb eine Phononreplik als Ursache dieser Linie ausgeschlossen werden kann. Zusätzlich

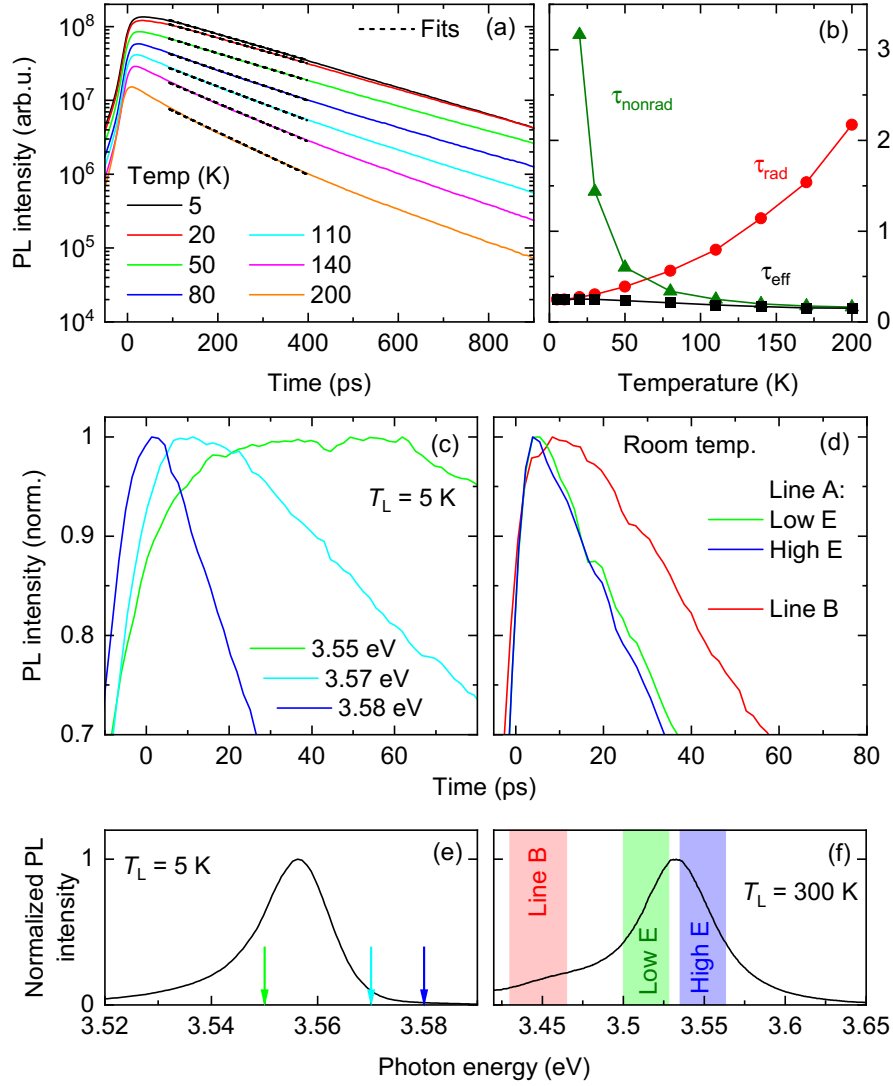


Abbildung 4.3.: (a) Temperaturabhängige Transienten der Linie A bei einer zeitlich gemittelten Anregungsdichte von  $9 \text{ W cm}^{-2}$  ( $= 1,5 \times 10^{11} \text{ Photonen/(Puls cm}^{-2})$ ) und einer Anregungsenergie von 4,79 eV. (b) Die gemessene Rekombinationsrate ( $\tau_{\text{eff}}^{-1}$ ) aus (a) setzt sich zusammen aus strahlender ( $\tau_{\text{rad}}^{-1}$ ) und nichtstrahlender Rekombinationsrate ( $\tau_{\text{nonrad}}^{-1}$ ). (c) Spektrale Abhängigkeit der PL-Transienten innerhalb der Linie A bei  $T_L = 5$  K. Die energetischen Positionen der Transienten sind in dem PL-Spektrum in (e) gegeben. (d) PL-Transienten bei Raumtemperatur. Linie B zeigt eine zeitliche Verzögerung von 10 ps. Die spektralen Bereiche der jeweiligen Transienten sind in dem PL-Spektrum in (f) markiert.

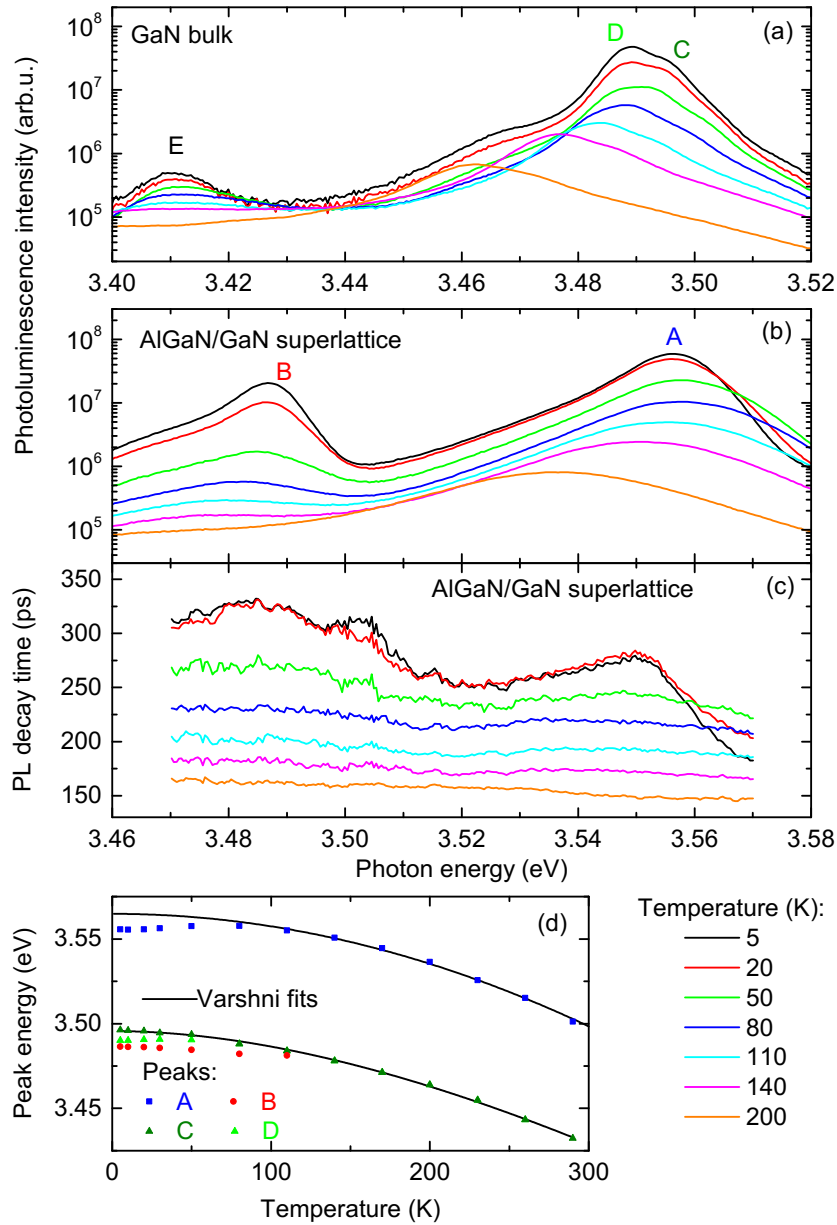


Abbildung 4.4.: Temperaturabhängige PL-Spektren bei einer Anregungsenergie von 4,79 eV von (a) GaN-Volumenmaterial und (b) des Übergitters. (c) Spektral aufgelöste gemessene Zerfallszeiten, ermittelt anhand eines exponentiellen Fits im Zeitbereich zwischen 80 und 400 ps. (d) Temperaturabhängige spektrale Positionen der Linien aus (a) und (b). Die durchgezogenen schwarzen Linien sind angepasste empirische Varshni-Funktionen aus Gleichung (4.2).

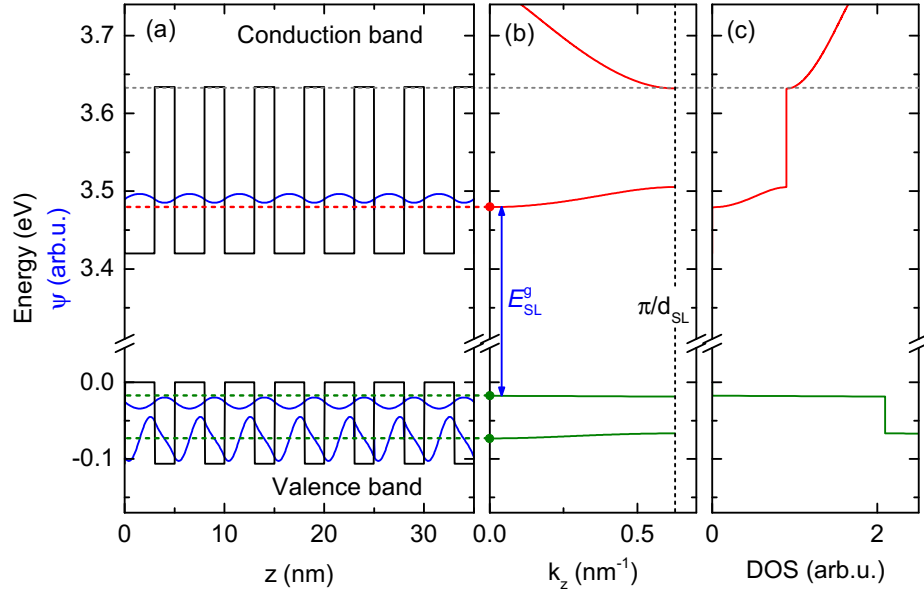


Abbildung 4.5.: (a) Bandlücke entlang der Wachstumsrichtung  $z$  mit Wellenfunktionen  $\psi$  der bindenden Zustände der Elektronen des ersten Minibands im Leitungsband und der schweren Löcher des ersten und zweiten Minibands im Valenzband (vgl. Punkte in (b)); (b) Die Kopplung der Zustände in benachbarten GaN Schichten führt zu einer elektronischen Minibandstruktur in Wachstumsrichtung, es bildet sich ein Miniband im Leitungsband und zwei für schwere Löcher im Valenzband aus. (c) Resultierende Zustandsdichte (DOS) der Elektronen (rot) und schweren Löcher (grün), wie in Abschnitt 2.3.3 diskutiert.

beträgt die Intensität der Linie B bei Raumtemperatur bis zu 50 % derjenigen der Linie A (siehe Abb. 4.1), was signifikant mehr als die in der Literatur veröffentlichten Werte einer Phononreplik ist [110,111]. Die spektrale Position der Linie B bei 3,44 eV legt die Vermutung nahe, dass ihr Ursprung in der GaN-Pufferschicht hinter dem Übergitter liegt. Diese hat eine Dicke von 3,8  $\mu\text{m}$ , vgl. Abschnitt 3.1, sodass es als Volumenmaterial betrachtet werden kann. In den Experimenten wurden Anregungsenergien von  $E_{\text{exc}} = 3,7$  eV, 3,81 eV und 4,79 eV verwendet, was wegen unterschiedlicher Absorptionskoeffizienten zu verschiedenen Eindringtiefen und Transmissionen durch das Übergitter führt, sodass die direkte Anregung der GaN-Pufferschicht variiert. Bei einer Anregungsenergie von  $E_{\text{exc}} = 4,79$  eV in zeitaufgelösten Messungen in den Abbildungen 4.2, 4.3 und 4.4 beträgt die Transmission ein Prozent, wenn zur Abschätzung ein Absorptionskoeffizient von  $1,5 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  angenommen wird. Auf die Ermittlung des Absorptionsspektrums des Übergitters wird noch im Abschnitt 4.1.2 eingegangen. Die direkte Anregung durch den Laserimpuls trägt folglich nur zu einem sehr geringen Teil zu der Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren in der GaN-Pufferschicht bei.

Des Weiteren kann die Anregung der GaN-Pufferschicht durch vertikalen Transport photogenerierter Ladungsträger erfolgen. Messungen in GaN-Volumenmaterial zeigen Diffusionslängen der Elektronen bei hohen Anregungsdichten von 300 nm [112], d. h. in der Größenordnung der Dicke des gesamten Übergitters. Jedoch geschieht die Diffusion durch eine 300 nm dicke GaN-Schicht in einem Zeitraum von 120 ps [112]. Erwartungsgemäß ist

die Beweglichkeit der Ladungsträger in elektronischen Minibändern in Wachstumsrichtung geringer als in GaN-Volumenmaterial, was eine noch längere Verzögerung bewirken sollte. Da die beobachtete Verzögerung in Abbildung 4.3 (d) nur 10 ps beträgt, hat der vertikale Transport nur einen geringen Einfluss auf die Anregung der GaN-Pufferschicht.

Einen weiteren Anregungsmechanismus stellt die Reabsorption der PL des Übergitters in der GaN-Pufferschicht dar. Die Korrelation zwischen der PL-Intensität der Linie A und der Linie B bei gleicher Anregungsdichte, siehe Abbildung 4.1 (d), legt eine Dominanz der Anregung durch Reabsorption nahe.

In den normierten Spektren in Abbildung 4.1 (b) beträgt die Photonenenergie der Anregung  $E_{\text{exc}} = 3,7$  eV, sodass die Transmission unter der Berücksichtigung eines Absorptionskoeffizienten von  $1 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$  bei fünf Prozent liegt. Dementsprechend führt die relative Zunahme der direkten Anregung zu einer höheren PL-Intensität aus der GaN-Pufferschicht. Zusätzlich führt das Besetzen der Zustände bei hohen Anregungsdichten zu einem Ausbleichen der Probe, was die Transmission weiter erhöht und für die überproportional starke Zunahme der Linie B verantwortlich ist.

Der schnelle Zerfall nach dem Laserimpuls der Transienten in Abbildung 4.2 (a) zeigt charakteristische Zerfallszeiten zwischen 120 ps und 350 ps, siehe Abbildung 4.2 (b), was mit Werten von AlGaIn- und GaN-Volumenmaterialien übereinstimmt [113–116]. Gerade bei geringen Anregungsdichten in Abbildung 4.2 (a) liegt deutlich ein nichtexponentieller PL-Zerfall vor, der in polaren Heterostrukturen verschiedene Ursachen haben kann. Diese sollen im folgenden Abschnitt diskutiert werden.

Ein strahlender Band-Band-Rekombinationsprozess ist proportional zum Produkt aus Elektron- und Lochdichte und zeigt folglich höhere Rekombinationsraten bei höheren Trägerdichten, d. h. bei hohen Anregungsdichten oder kurz nach dem Anregungsimpuls [117]. Eine Zunahme der Rekombinationsrate in Kombination mit einem nichtexponentiellen Zerfall bei hohen Ladungsträgerdichten ist in Abbildung 4.2 (a) aber nicht zu erkennen, weshalb ein solcher bimolekularer Prozess nur eine untergeordnete Rolle spielt. Die Rekombinationskinetik bei hohen Anregungsdichten wird folglich hauptsächlich von exzitonischer Emission und nichtstrahlender Rekombination dominiert. In beiden Fällen handelt es sich um monomolekulare Prozesse.

Wachstumsbedingte piezoelektrische Felder in Quantenfilmen sorgen für eine Separierung der Elektronen und Löcher, sodass das Überlappintegral verringert und somit die Rekombinationsrate reduziert wird. Hohe Trägerdichten schirmen diese Felder ab und sorgen somit für eine schnellere Rekombination [118]. Dieser Effekt könnte folglich zu einer schnellen Rekombination kurz nach dem Anregungsimpuls führen, jedoch müsste auch bei hohen Anregungsdichten in Abbildung 4.2 (a) die Zerfallszeit entsprechend kurz ausfallen. Dies ist in Abbildung 4.2 (b) nicht der Fall, was ein zusätzliches Indiz dafür ist, dass die Auswirkung intrinsischer Felder über den *quantum-confined Stark effect* auf die Ladungsträgerkinetik im untersuchten Ladungsträgerbereich gering ist.

Zusätzlich können Ladungsträger in Defekte eingefangen werden, die als Shockley-Read-Hall (SRH)-Rekombinationszentren dienen. Der Einfluss dieser Zentren auf die gemessene Rekombinationsrate ist eher bei geringen Anregungsdichten relevant. Aufgrund der langen Verweildauer der Ladungsträger in solchen Zentren können diese gesättigt werden und stehen als mögliche Rekombinationskanäle nicht mehr zur Verfügung. Dies äußert sich ebenfalls in einem nichtexponentiellen Zerfall.

Die Abhängigkeit der PL-Intensität von der Anregungsleistung im log-log-Plot in

Abbildung 4.2 (c) zeigt Exponenten zwischen 1 und 2, was auf eine Dominanz der exzitonischen Emission hindeutet [119]. Während sich die maximale PL-Intensität der Transienten aus dem Verhältnis zwischen strahlender und nichtstrahlender Rekombination inklusive Ladungsträgereinfangen in ungesättigte SRH-Rekombinationszentren zusammensetzt, wird die zeitintegrierte PL-Intensität auch von dem transienten Verlauf der PL-Intensität beeinflusst. Der höhere Exponent der an die zeitintegrierte PL-Intensität angepassten Potenzfunktion deutet auf eine superlineare Zunahme hin, die der Sättigung der SRH-Rekombinationszentren zugeschrieben werden kann [120]. Der schnelle Zerfall in den ersten 500 ps nach dem Laserimpuls ist demnach ein Maß für die Einfangkinetik in Defektzustände. Die Sättigung äußert sich folglich in der Zunahme der charakteristischen Zerfallszeit bei höheren Anregungsdichten in Abbildung 4.2 (b).

Die Transienten bei tiefen Temperaturen in Abbildung 4.3 (a) zeigen ein einfaches exponentielles Verhalten. Hier dominiert die strahlende Rekombination [121,122], was bei einer strahlenden Zerfallszeit von 250 ps mit Literaturwerten von GaN Volumenmaterial bei tiefen Temperaturen übereinstimmt [123,124]. Die geringe thermische Energie schränkt die Diffusion der Ladungsträger ein, sodass nichtstrahlende Rekombinationszentren wie Defekte schwieriger zu erreichen sind. Der Einfluss der nichtstrahlenden Rekombination steigt bei zunehmender Temperatur an, was sich sowohl in einem nichtexponentiellen Verhalten der PL durch das oben beschriebene Einfangen in sättigbare Defekte, als auch in einer Verringerung der PL-Intensität äußert.

Bei tiefen Temperaturen kann eine interne Quanteneffizienz von  $\eta = 1$  angenommen werden, sodass das Maximum der Transienten, d. h. die PL-Intensität unmittelbar nach dem Laserimpuls, der maximalen strahlenden Rekombination entspricht. Diese verringert sich mit zunehmender Temperatur aufgrund zunehmender nichtstrahlender Rekombination. Das Verhältnis des Intensitätsmaximums  $I_0$  bei einer Temperatur  $T$  zum Intensitätsmaximum bei  $T = 5$  K wird durch die interne Quanteneffizienz bestimmt, die wiederum das Verhältnis aus strahlender und effektiver Rekombinationsrate ist. Letztere entspricht dem Inversen der gemessenen PL-Zerfallszeit  $\tau_{\text{eff}}$ . Es gilt folglich [123]:

$$I_0(T) = \eta \cdot I_0(T = 5 \text{ K}), \quad \text{mit} \quad \eta = \frac{\tau_{\text{eff}}(T)}{\tau_{\text{rad}}(T)}. \quad (4.1)$$

Entsprechend Gleichung (2.48) in Abschnitt 2.4.3 addieren sich die Zerfallszeiten strahlender Rekombination  $\tau_{\text{rad}}$  und nichtstrahlender Rekombination  $\tau_{\text{nonrad}}$  reziprok, sodass von der Quanteneffizienz aus Gleichung (4.1) auf die nichtstrahlende Rekombinationszeit zurückgeschlossen werden kann. Das Zeitfenster zur Bestimmung der Zerfallszeit der Photolumineszenz  $\tau_{\text{eff}}$  beschränkt sich auf 80-400 ps nach dem Puls, in dem bei höheren Temperaturen die nichtstrahlende Rekombination über sättigbare Defekte noch nicht gesättigt ist. Die temperaturabhängigen strahlenden, nichtstrahlenden, sowie gemessenen Zerfallszeiten sind in Abbildung 4.3 (b) dargestellt.

Die gemessene Zerfallszeit zeigt über den gesamten Temperaturbereich nur eine geringe Veränderung, was auf das gegenläufige Verhalten der temperaturabhängigen Zerfallszeiten der strahlenden und nichtstrahlenden Rekombination zurückzuführen ist. Die strahlende Zerfallszeit ist eine Zusammensetzung verschiedener Raten individueller strahlender Rekombinationsprozesse, deren jeweiliger Beitrag zur gesamten strahlenden Rekombination temperaturabhängig ist. Gebundene Exzitonen dominieren bei tiefen Temperaturen die strahlende Rekombination. Ab einer Temperatur von 20 K bis 50 K

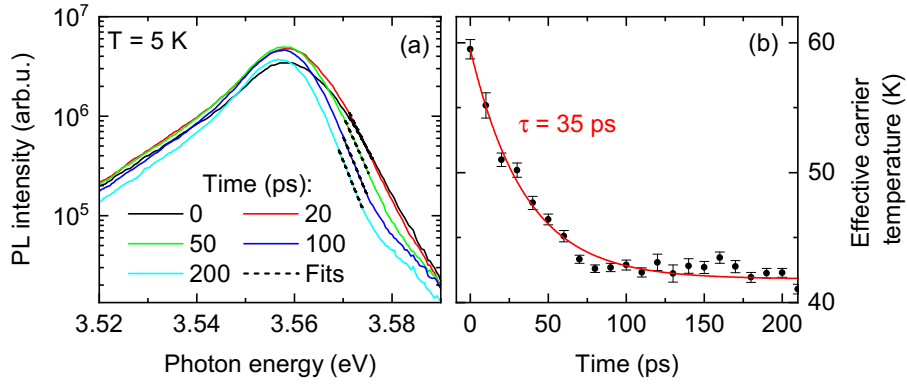


Abbildung 4.6.: (a) PL-Spektren bei 5 K. Aus der hochenergetischen Flanke wurden entsprechend der Boltzmann-Verteilung die Ladungsträgertemperaturen extrahiert, die in Teilgrafik (b) aufgetragen sind. Die Fits wurden in einem Energieintervall von 5 meV um die steilste Steigung angepasst.

dissoziieren die gebundenen Exzitonen in GaN-Volumenmaterial und die Rekombination beruht maßgeblich auf freien Exzitonen [123]. Eine weitere Temperaturerhöhung erhöht anschließend den Anteil der Band-Band-Rekombination, wobei aufgrund der hohen Exzitonbindungsenergie auch noch bei 200 K die exzitonische Emission vorherrschend ist. Aufgrund der verschiedenen Rekombinationsraten der unterschiedlichen Prozesse ergibt sich somit eine Zunahme der strahlenden Zerfallszeit bis in den Nanosekundenbereich bei  $T = 200$  K, was mit Literaturwerten von GaN-Volumenmaterial übereinstimmt [121, 123].

In Abbildung 4.3 (c) zeigt eine von der Emissionsenergie abhängige Dynamik des Anstiegs des PL-Transienten bei tiefen Temperaturen. Der Anstieg der PL-Intensität auf der niederenergetischen Seite des Spektrums bei 3,55 eV verzögert sich um 50 ps gegenüber des Maximums des Transienten auf der höherenergetischen Seite bei 3,58 eV. Diese Verzögerung basiert auf einer Umverteilung der Ladungsträger von energetisch höheren zu niedrigeren Zuständen im Band während des Abkühlens des Elektronengases, bei tiefen Temperaturen hauptsächlich durch die Emission akustischer Phononen [21]. Aus der hochenergetischen Flanke der PL-Spektren lässt sich entsprechend Abschnitt 2.4.3 näherungsweise die Temperatur der angeregten Elektronen ermitteln. In Abbildung 4.6 (b) sind die entsprechenden Temperaturen aus den Spektren zu verschiedenen Zeiten nach dem Impuls (Abb. 4.6 (a)) dargestellt. Der Prozess des Ladungsträgerkühlens findet auf einer Zeitskala von 35 ps statt und ist damit in guter Übereinstimmung mit der Zeitskala der Umverteilung der Ladungsträger von energetisch höheren zu niedrigeren Zuständen in Abbildung 4.3 (c). Auf den Kühlprozess der angeregten Ladungsträger wird noch im Abschnitt 4.2.2 eingegangen.

Bei Raumtemperatur hingegen zeigen die PL-Anstiege in Abbildung 4.3 (d) der Emission bei höherer Photonenenergie (3,57 eV - blaue Kurve) und niedriger Energie (3,49 eV - grüne Kurve) keinen signifikanten Unterschied. Demnach findet innerhalb der Zeitaufösung des Experiments sowohl die Thermalisierung der Ladungsträger als auch ihr Kühlen statt, weshalb die Dynamik dieser Prozesse bei Raumtemperatur mithilfe eines Anrege-Abfrage-Experiments mit besserer zeitlicher Auflösung untersucht wurde und im Verlauf dieses Kapitels noch diskutiert wird.

Im Folgenden wird die Temperaturabhängigkeit der spektralen Positionen der Linien diskutiert. In Abbildung 4.4 (d) sind die spektralen Positionen der Linien A und B des Übergitters und der Linien C und D des GaN-Volumenmaterials dargestellt. Die Herkunft der Linien A und B des Übergitters wurde bereits diskutiert. Die zwei Maxima der Spektren von GaN-Volumenmaterial bei tiefen Temperaturen in Abbildung 4.4 (a) können gebundenen Exzitonen (Linie D) und freien Exzitonen (Linie C) zugeordnet werden [121]. Der energetische Abstand der Linie E zu dem Hauptpeak beträgt 90 meV, was der LO-Phononenenergie in Wurtzit GaN entspricht und somit sehr wahrscheinlich eine Phononreplik darstellt. Die energetischen Positionen der Linie C gehorchen der empirischen Varshni-Formel [125], die mit den Koeffizienten  $\alpha$  und  $\beta$  die Bandlücke  $E^g$  und die Temperatur  $T$  verknüpft:

$$E^g(T) = E^g(T = 0 \text{ K}) - \frac{\alpha T^2}{\beta + T}. \quad (4.2)$$

Gleiches gilt für die Linie B des Übergitters in Abbildung 4.4 (b) bei tiefen Temperaturen. Auch die Linie A zeigt in einem Temperaturbereich zwischen 100 K und 200 K ein Verhalten, welches durch die Varshni-Formel beschrieben werden kann. Die Übereinstimmung mit der Linie C der gebundenen Exzitonen in GaN-Volumenmaterial ist ein zusätzliches Indiz für die Herkunft der Linie B aus der GaN-Pufferschicht. Diese ist mit einer Konzentration von  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$   $n$ -dotiert, sodass die Rekombination gebundener Exzitonen die PL-Emission dominiert.

Auffällig bei der Betrachtung der spektralen Peakpositionen der Linie A ist die Abweichung bei 5 K von der angepassten Varshni-Funktion. Bei zunehmender Temperatur erfährt das Maximum eine leichte Blauverschiebung um 2 meV bis zu einer Temperatur von  $\sim 70$  K. Diese Anomalität in dem Temperaturverhalten, die in der Literatur häufig „S-Shape“ genannt wird, ist üblich für GaN-basierte Mischkristalle und wurde bereits in InGaIn/GaN-Quantenfilmen [126–129] und AlGaIn-Mischkristallen [113, 130–133] beobachtet. Entscheidend für dieses Verhalten ist die Mobilität der Exzitonen. Bei tiefen Temperaturen dominiert die strahlende Rekombination von Exzitonen, die aufgrund der geringen thermischen Energie an lokale Potentialminima gebunden sind. Für energetisch höhere Exzitonen existieren neben der strahlenden Rekombination zusätzlich die Relaxation in tiefere Zustände, was zu kürzeren gemessenen Lebensdauern bei höheren Emissionsenergien und folglich zu dem Gradienten der Lebensdauer in Abbildung 4.4 (c) zwischen 3,55 und 3,57 eV führt und das Spektrum zu niedrigeren Energien verschiebt [134, 135]. Ab einer Temperatur von 30 K werden aus den an Potentialminima gebundenen Exzitonen freie Exzitonen, was in einer Blauverschiebung resultiert und anschließend ab ca. 80 K der angepassten Varshni-Funktion folgt. Auch verschwindet ab einer Temperatur von 30 K der Gradient im Zerfallszeitspektrum in Abbildung 4.4 (c). Die Abweichung der Maximumsenergie von der durch die Varshni-Funktion bestimmten Energie bei einer Temperatur von 5 K entspricht der Lokalisierungsenergie der Exzitonen [133].

Untersuchungen haben gezeigt, dass die Tiefe der Potentialminima und folglich auch die Temperatur der Blauverschiebung ihren Ursprung in der Fluktuation des Aluminiumgehalts im Mischkristall und der daraus resultierenden Potentialfluktuation hat [113, 130–133]. So wurde von einer Übergangstemperatur, die im Folgenden als Temperatur der stärksten Blauverschiebung definiert ist, von 93 K bei einem Al-Gehalt von 22 % [113], 50 K bei 18 % [132] und 60 K bei 17 % [130] berichtet. Diese Werte stimmen



gut mit den hier gemessenen 50 K bei einem Aluminiumgehalt von 18 % in den Barrieren überein. Jedoch muss angemerkt werden, dass sich die Untersuchungen nicht auf Übergitter oder Quantenfilme beziehen, sondern auf epitaktische AlGaIn-Schichten, die mindestens eine Dicke von 100 nm aufwiesen.

Eine spektrale Abhängigkeit der gemessenen Lebensdauer wurde bei der Linie B nicht beobachtet, siehe Abbildung 4.4 (c) zwischen 3,47 und 3,49 eV. Dies ist ein weiteres Indiz für die Herkunft der Linie B aus der GaN-Pufferschicht, da diese keine Aluminiumatome beinhaltet.

#### 4.1.2. Absorption des Übergitters

Die Bestimmung der Herkunft der Linie B im vorherigen Abschnitt ermöglicht die Untersuchung der Transmission durch das Übergitter mittels des im Abschnitt 3.2.4 eingeführten PLE-Messaufbaus. In Abbildung 4.7 (a) sind die PLE-Spektren für zwei Monitorenergien dargestellt, deren spektrale Positionen denjenigen der blauen und roten Pfeile entsprechen. Diese wurden auf die hochenergetische und niederenergetische Flanke des PL-Spektrums (schwarze Linie in Abb. 4.7 (a)) gesetzt, sodass ein Großteil der jeweiligen Lumineszenz aus dem Übergitter (3,59 eV) oder aus der GaN-Pufferschicht dahinter (3,40 eV) stammt. Für die Auswertung der Transmission wird eine zu vernachlässigende Transmission durch das Übergitter bei Photonenenergien oberhalb von 4,4 eV angenommen, was sich im parallelen Verlauf der PLE-Spektren beider Monitorenergien widerspiegelt. Die GaN-Pufferschicht wird bei diesen Photonenenergien nur durch Reabsorption der PL des Übergitters angeregt. Bei abnehmender Photonenenergie nimmt die PLE-Intensität bei einer Monitorenergie von 3,4 eV stärker zu als die bei einer Monitorenergie von 3,59 eV. Dies weist auf eine Zunahme der PLE-Intensität aus der GaN-Pufferschicht aufgrund erhöhter Transmission durch das Übergitter hin. Das Verhältnis beider PLE-Spektren normiert auf deren Verhältnis bei Photonenenergien oberhalb von 4,4 eV ist proportional zum Transmissionsspektrum  $T_{\text{Trans}}(E)$  durch das Übergitter:

$$T_{\text{Trans}}(E) \propto \frac{I_{3.4\text{ eV}}(E)}{I_{3.59\text{ eV}}(E)} - \frac{I_{3.4\text{ eV}}(4.6\text{ eV})}{I_{3.59\text{ eV}}(4.6\text{ eV})}. \quad (4.3)$$

Daraus kann bei bekannter Dicke  $d_{\text{ges}}$  des gesamten Übergitters von 300 nm anhand des Lambert-Beerschen Gesetzes

$$T_{\text{Trans}}(E) = \exp(-\alpha(E) d_{\text{ges}}) \quad (4.4)$$

der Absorptionskoeffizient  $\alpha(E)$  des Übergitters ermittelt werden.

Die Abschätzung der Transmission basiert auf der Annahme, dass die PLE-Intensität aus der GaN-Pufferschicht linear mit der direkten Anregung durch das Übergitter zunimmt. Die maximale PLE-Intensität aus der GaN-Pufferschicht für  $T_{\text{Trans}} = 1$  ist jedoch nicht bekannt, weshalb als Referenz ein Absorptionsspektrum aus [136] dient, welches für einen  $\text{Al}_{0.072}\text{Ga}_{0.928}\text{N}$ -Mischkristall interpoliert wurde. Die gewählte Aluminiumkonzentration entspricht der gemittelten Konzentration des Übergitters. Die Multiplikation der Gleichung (4.3) mit einem angepassten Faktor zeigt eine gute Übereinstimmung des spektralen Verlaufs des Absorptionsspektrums aus den PLE-Daten (magentafarbene Punkte in Abbildung 4.7 (b)) mit den Literaturwerten. Die Daten des dazugehörigen Transmissionsspektrums sind als grüne Punkte in Abbildung 4.7 (b) dargestellt.

Für die Berechnung der Eindringtiefen in der bisherigen Diskussion wurde auf dieses Absorptionsspektrum zurückgegriffen.

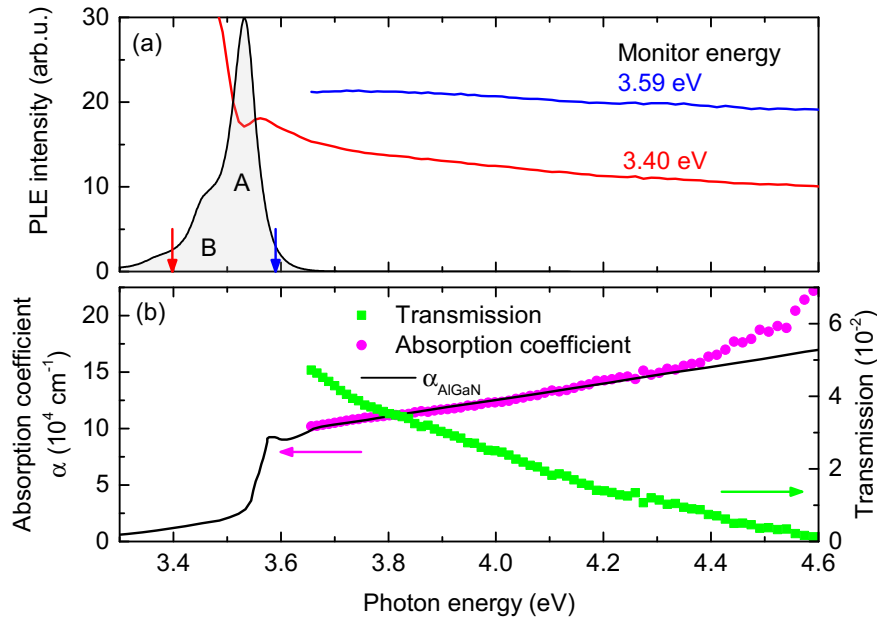


Abbildung 4.7.: (a) PLE-Spektren bei Monitorenergien von 3,4 eV und 3,59 eV, die durch Pfeile mit einem PL-Spektrum als Referenz angezeigt werden. Die Vergrößerung der Differenz beider PLE-Spektren zu höheren Photonenenergien wird einer Verringerung der Transmission zugeschrieben, die in (b) als grüne Punkte dargestellt ist. Daraus resultiert eine Abschätzung des Absorptionskoeffizienten des Übergitters, ebenfalls in (b) dargestellt. Die schwarze Linie entspricht dem Absorptionsspektrum aus [136], interpoliert für  $\text{Al}_{0.072}\text{Ga}_{0.928}\text{N}$ .

#### 4.1.3. Untersuchung der strukturellen Stabilität

Die Anwendung von Nitrid-basierten optoelektronischen Bauelementen wie Diodenlasern oder sättigbaren Absorbern setzt eine Stabilität der Probenoberfläche bei hoher optischer Anregung voraus [137, 138]. Degradationseffekte wurden an AlGaN-Proben beobachtet [139, 140] und durch eine Passivierung der Oberfläche mit Siliziumnitrid ( $\text{SiN}_x$ ) und Siliziumoxid ( $\text{SiO}_2$ ) [141] verhindert. Für die Reproduzierbarkeit der spektroskopischen Untersuchungen, wie sie in dieser Arbeit durchgeführt wurden, ist ein stabiles Verhalten der Probe über einen Zeitraum von mindestens mehreren Stunden unabdingbar. Aus diesem Grund wurden Teile des Wafers mit einer 43 nm dicken  $\text{SiN}$ -Schicht passiviert, was durch den direkten Vergleich der beschichteten und unbeschichteten Struktur eine systematische Untersuchung des Einflusses und der Wirksamkeit der Passivierung ermöglicht. Die optische Dicke (Brechungsindex  $\times$  Dicke) dieser  $\text{SiN}$ -Beschichtung entspricht  $\lambda/4$  bei  $\lambda = 350 \text{ nm}$  (3,54 eV) und wirkt somit für diese Wellenlänge als Antireflexbeschichtung.

Zur Untersuchung der Langzeitstabilität diente der in Abschnitt 3.2.1 erläuterte TRPL-Aufbau. Die beschichteten und unbeschichteten Teile des Wafers wurden mit einer gemittelten Anregungsdichte von  $200 \text{ W cm}^{-2}$  über einen Zeitraum von ca. sechs Stunden bei

Raumtemperatur angeregt. Zu verschiedenen Zeitpunkten wurden Daten aufgenommen, sodass Degradationseffekte in-situ quantifiziert werden konnten.

Die PL-Zerfallszeit der Linie A in einem Zeitbereich zwischen 50 ps und 300 ps nach dem Impuls ist in Abbildung 4.8 (a) für die beschichtete und die unbeschichtete Probe dargestellt. Abbildung 4.8 (b) zeigt die dazugehörige PL-Intensität. Die unbeschichtete Probe zeigt sowohl in der Zerfallszeit als auch in der Intensität einen starken Rückgang in den ersten 40 Minuten, gefolgt von einer leichten Zunahme beider Messgrößen. Bei der beschichteten Probe hingegen ist sowohl die Zerfallszeit als auch die Intensität über die gesamte Messdauer stabil. Beide Messgrößen liegen jedoch unter denjenigen der unbeschichteten Probe.

In Abbildung 4.8 (c) sind die spektral aufgelösten PL-Zerfallszeiten der beschichteten und unbeschichteten Probe mit einem normierten PL-Spektrum als Referenz dargestellt. Wie in Teilgrafik (a) schon angedeutet, ist die globale Reduktion der PL-Zerfallszeit des unbeschichteten Übergitters mit 20 % stärker ausgeprägt als bei der passivierten Probe. Letztere zeigt ein stabiles Verhalten über die gesamte Messdauer von 360 min. Die Form der Zerfallszeitspektren ändert sich durch die optische Belastung weder bei der beschichteten, noch bei der unbeschichteten Probe.

In Abbildung 4.8 (d) sind die Ergebnisse einer Langzeitmessung mit dem im Abschnitt 3.3.1 erläuterten Anrege-Abfrage-Experiment dargestellt. Auch die Anregung mit geringeren Photonenenergien von 3,54 eV nahe des Interbandübergangs zeigt ein instabiles Verhalten der Reflektivitätsänderung der unbeschichteten Probe über Stunden, was durch die Beschichtung unterdrückt wird.

Alle in Abbildung 4.8 präsentierten Daten zeigen, dass eine Beschichtung der Übergitterstruktur mit SiN die Eigenschaften der Probe unter starker optischer Anregung stabilisiert. Dies bewirkt jedoch eine höhere Rekombinationsrate in der beschichteten Probe zu jedem Zeitpunkt des Messzeitraums von sechs Stunden, was die PL-Intensität reduziert. Durch die Passivierung werden zusätzliche nichtstrahlende Rekombinationskanäle erzeugt, die die beobachtete schnellere Rekombination erklären. Ein potentieller Mechanismus ist die zusätzliche Erzeugung von Punktdefekten in der Oberfläche des Übergitters. Falls jedoch die Defektdichte konstant bleibt, ist das Verbiegen der elektronischen Bänder an der Oberfläche durch die aufgetragene Passivierung ein weiterer möglicher Mechanismus. Dies hat sowohl einen Einfluss auf die PL-Intensität als auch auf die Trägerkinetik. Da weder die PL-Spektren noch die Formen der Zerfallszeitspektren in Abb. 4.8 (c) eine große Änderung zeigen, liegt die Vermutung nahe, dass nur ein geringer Teil der Oberflächenzustände zur PL beiträgt.

Da die Form der Zerfallszeitspektren in Abb. 4.8 (c) während des Alterungsprozesses erhalten bleibt und sich nur eine globale Verschiebung zu niedrigeren Zeitkonstanten zeigt, sind die zusätzlichen Rekombinationsmechanismen nichtstrahlend oder außerhalb des hier untersuchten Spektralbereichs.

Die Veränderung der PL-Intensität und Zerfallszeit im Laufe der Messzeit von sechs Stunden zeigt einen Alterungsprozess der unbeschichteten Probe, der sich aus einer Verschlechterung in den ersten 40 Minuten und einer anschließenden vermeintlichen Wiederherstellung zusammensetzt. Ein solches Verhalten wurde bereits in der Literatur diskutiert: So werden durch die Verbiegung der Bänder zu höheren Energien wegen Oberflächenzuständen in [0001]-GaN Elektronen und Löcher separiert, was zu einer Akkumulation von positiven Ladungsträgern an der Oberfläche führt. Die resultierende positive Ladung führt

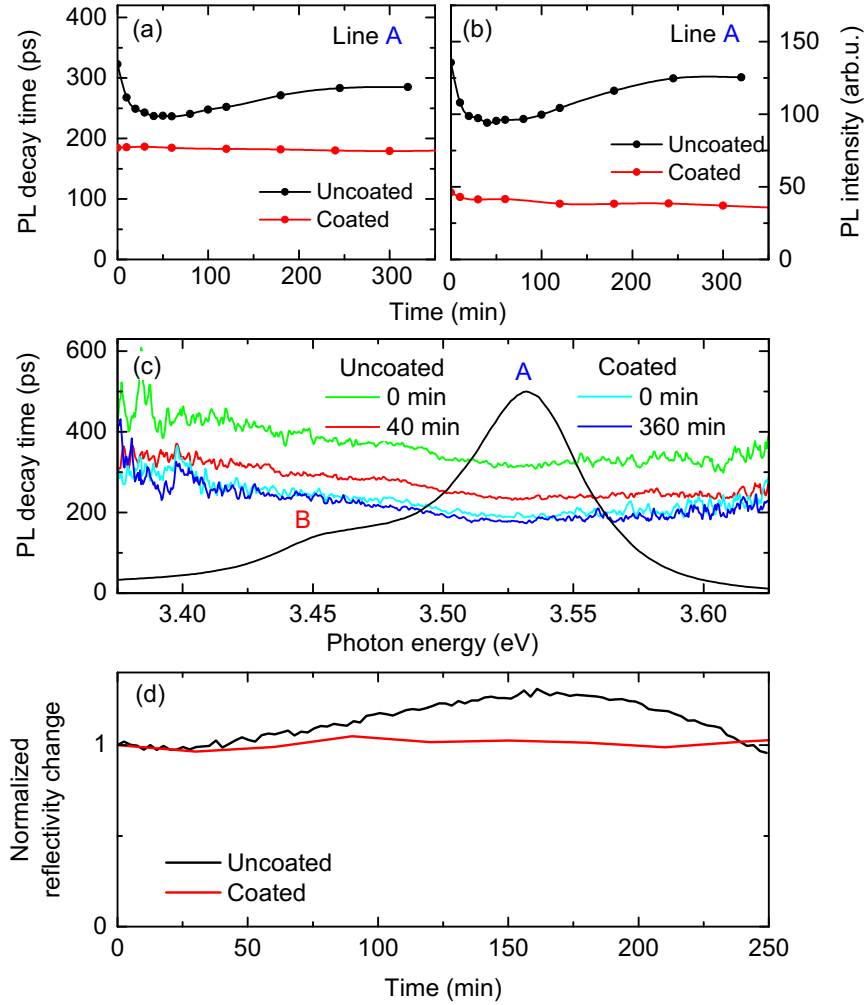


Abbildung 4.8.: Langzeitexperimente an beschichteten und unbeschichteten Bereichen des AlGaIn/GaN-Übergitters. Die Anregungsdichte betrug  $200 \text{ W cm}^{-2}$ , was bei einer Photonenenergie von  $E_{\text{exc}} = 4,79 \text{ eV}$  eine Ladungsträgerdichte von  $n = 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  pro Impuls erzeugt. (a) Zerfallszeit in einem Zeitbereich von 50 ps bis 300 ps nach dem Impuls zu unterschiedlichen Zeiten der optischen Belastung, (b) dazugehörige PL-Intensität. (c) Spektral aufgelöste PL-Zerfallszeit der beschichteten und der unbeschichteten Probe in einem Zeitbereich von 50 ps bis 300 ps nach dem Impuls. Ein PL-Spektrum wird zusätzlich gezeigt. (d) Langzeitexperiment im Anrege-Abfrage-Experiment aus Abschnitt 3.3.1 mit gepulster Anregung (50 fs, 1 MHz,  $E_{\text{exc}}=3,54 \text{ eV}$  und  $1700 \text{ W cm}^{-2}$ ). Die Daten  $\Delta R/R_0$  sind normalisiert auf den Wert bei  $t=0 \text{ min}$ .

zu der Anlagerung von Adsorbaten an der Oberfläche, die eine zusätzliche nichtstrahlende Rekombination begünstigen [139, 140]. Eine hohe  $n$ -Dotierung der Probe verstärkt zusätzlich die Veränderung der PL-Eigenschaften während der optischen Anregung [139]. Ferner unterdrückt auch eine Passivierung mit Aluminiumnitrid Degradationseffekte und sorgt für ein stabiles Verhalten, solange unterhalb der Bandlücke von Aluminiumnitrid angeregt wird [140].

Mit den zur Verfügung stehenden experimentellen Methoden ist eine weitere mikroskopische Untersuchung des Degradationsprozesses nicht möglich. Jedoch zeigt die Passivierung auch in Anrege-Abfrage-Experimenten ein stabiles Verhalten der Reflektivität, siehe Abbildung 4.8 (d), was für die Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerdynamik dieses Übergitters im nächsten Kapitel äußerst wichtig ist.

## 4.2. Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik

Der folgende Abschnitt befasst sich mit der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik des AlGaIn/GaN-Übergitters. Für die Untersuchung dienten Anrege-Abfrage-Experimente mit dem in Abschnitt 3.3.1 beschriebenen Aufbau, der eine zeitliche und spektrale Auflösung über die Breite des Impulsspektrums ermöglichte. Aufgrund der in Abschnitt 4.1.3 behandelten Degradation bei hohen optischen Anregungsdichten wurde das mit SiN beschichtete Übergitter untersucht.

### 4.2.1. Experimentelle Ergebnisse

Stationäre Reflexionsspektren der beschichteten und unbeschichteten Probe sind in Abbildung 4.9 (a) dargestellt. Sie zeigen disperse Modulationen der Reflektivität im Bereich des Interbandübergangs des Übergitters bei  $E_{\text{SL}}^g = 3,5$  eV. Zusätzlich ist ein PL-Spektrum dargestellt.

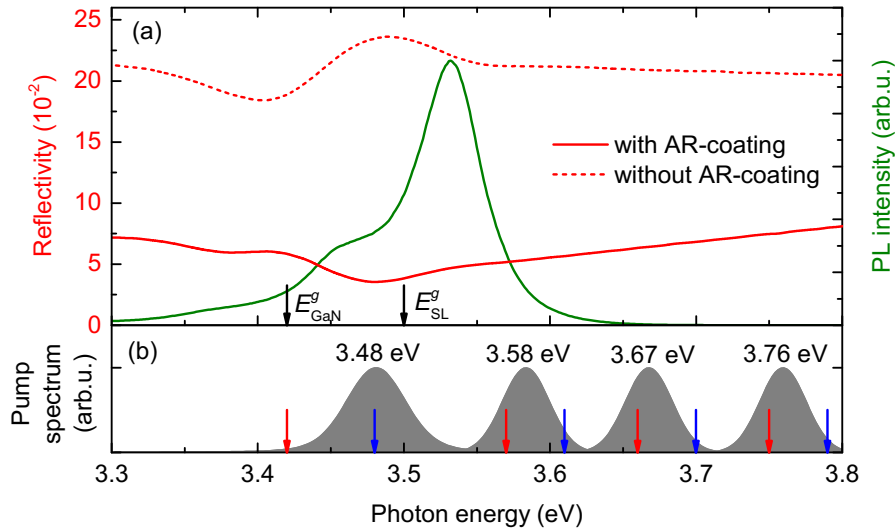


Abbildung 4.9.: (a) Stationäre Reflexionsspektren der beschichteten (rote durchgezogene Linie) und unbeschichteten (rote gestrichelte Linie) Übergitterstruktur, PL-Spektrum zum Vergleich (grüne Linie). (b) Spektren der verwendeten Anrege- und Abfragepulse der Untersuchungen in vier verschiedenen Spektralbereichen. Die roten und blauen Pfeile zeigen die spektrale Position der Transienten in Abb. 4.10 und Abb. 4.11 an.

Das beschichtete Übergitter wurde in vier verschiedenen Spektralbereichen untersucht, die dazugehörigen Spektren der Anrege- und Abfrageimpulse werden in der Teilgrafik 4.9 (b) gezeigt. Der Impuls mit der zentralen Photonenenergie von  $E_{\text{Pump}} = 3,48$  eV untersucht die Ladungsträgerdynamik im Spektralbereich zwischen der Bandlücke von GaN und des Interbandübergangs des Übergitters. Die drei Impulse bei zentralen Photonenenergien von  $E_{\text{Pump}} = 3,61$  eV,  $3,67$  eV und  $3,75$  eV dienen der Untersuchung bei Photonenenergien oberhalb des Interbandübergangs. Die Pfeile zeigen die dazugehörigen energetischen Positionen der Transienten an, die im weiteren Verlauf vorgestellt werden. Die Energie der Anregeimpulse betragen 6 nJ und 0,6 nJ, die der Abfrageimpulse waren

jeweils um den Faktor 10 kleiner. Bei einem Absorptionskoeffizienten in dem untersuchten Spektralbereich von  $\alpha = 1 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ , wie er im Abschnitt 4.1.2 ermittelt wurde, ergibt sich eine Eindringtiefe von 200 nm. Bei niedrigeren Photonenenergien und hohen Impulsenergien nimmt aufgrund der Besetzung der Interbandübergänge der Absorptionskoeffizient ab, sodass sich die Eindringtiefe vergrößert. Unter der Annahme, dass Elektron-Loch-Paare über die gesamte Dicke des Übergitters erzeugt werden, ergeben sich Ladungsträgerdichten pro GaN-Quantenfilm von  $n = 2,8 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  bei einer Impulsenergie von 6 nJ, bzw.  $n = 2,8 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  bei 0,6 nJ.

Abbildung 4.10 zeigt die Ergebnisse der spektroskopischen Untersuchung nahe der Übergitterbandlücke  $E_{\text{SL}}^g$ . Die transienten Spektren in Teilgrafik (a) weisen eine positive Reflektivitätsänderung im Bereich oberhalb von 3,45 eV und eine negative Reflektivitätsänderung bei Photonenenergien unterhalb 3,45 eV auf. Das zeitabhängige Verhalten dieser beiden Bereiche zeigen die Transienten in den Abbildungen 4.10 (b) und 4.10 (c), deren Photonenenergien den Positionen der Pfeile in Teilgrafik (a) entsprechen. Wie in Teilgrafik (b) zu erkennen ist, geschieht der Anstieg der Reflektivitätsänderung bei hohen Photonenenergien (3,48 eV) innerhalb der Zeitauflösung des Experiments, während die negative Reflektivitätsänderung bei geringeren Photonenenergien (3,42 eV) einen um 150 – 200 fs verzögerten Anstieg aufweist. Die gestrichelten Kurven sind die transienten Reflektivitätsänderungen bei Anregungsimpulsenergien von 0,6 nJ, normiert auf die Signalhöhe der 6 nJ-Messung. Auf längeren Zeitskalen, siehe Abbildung 4.10 (c), nimmt bei beiden Energien die Reflektivitätsänderung auf Zeitskalen von mehreren Hundert Pikosekunden ab.

In Abbildung 4.11 sind die Ergebnisse der Untersuchung im Spektralbereich oberhalb des ersten Interbandübergangs des Übergitters dargestellt. Die Anregungsimpulse und die spektralen Positionen der Transienten entsprechen denjenigen oberhalb von 3,55 eV in Abbildung 4.9 (b). Die negative Reflektivitätsänderung aller Transienten zeigt innerhalb weniger Femtosekunden einen Signalanstieg um 5-10 %, gefolgt von einem verzögerten Anstieg, der sowohl bei geringeren Photonenenergien als auch bei stärkeren Anregungsimpulsintensitäten länger andauert und sich über 2 ps erstrecken kann (siehe Abb. 4.11 (c), 6 nJ-Linie). Bei allen Transienten folgt anschließend ein langsamer Abfall der Reflektivitätsänderung, der ebenfalls eine Abhängigkeit der Photonenenergien und Intensitäten der Anregungsimpulse aufweist. An die niederenergetischen Transienten der jeweiligen 6 nJ-Messungen wurde eine exponentielle Zerfallsfunktion angepasst; die charakteristischen Zerfallszeiten sind ebenfalls in der Grafik angegeben. Die Reduktion der Reflektivitätsänderungen geschieht schneller bei höheren Photonenenergien.

#### 4.2.2. Diskussion der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik

Die Diskussion der ultraschnellen Ladungsträgerkinetik widmet sich zuerst der Herkunft der Reflektivitätsänderung. Durch den Anregimpuls werden Elektron-Loch-Paare im Übergitter und zu einem geringen Teil auch in der GaN-Pufferschicht hinter dem Übergitter erzeugt. Diese Elektron-Loch-Paare führen durch Bandlückenrenormierung zu einer Verringerung der Bandlücke und zu einem Verschieben des Reflektivitätsspektrums zu geringeren Energien [142, 143], was bei einer dreidimensionalen Trägerdichte von  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  ca. 15 meV beträgt [105].

Ein weiterer Mechanismus der Reflektivitätsänderung ist die Reduzierung des Absorptionskoeffizienten durch das Besetzen der verfügbaren Zustände für Interbandanregung.

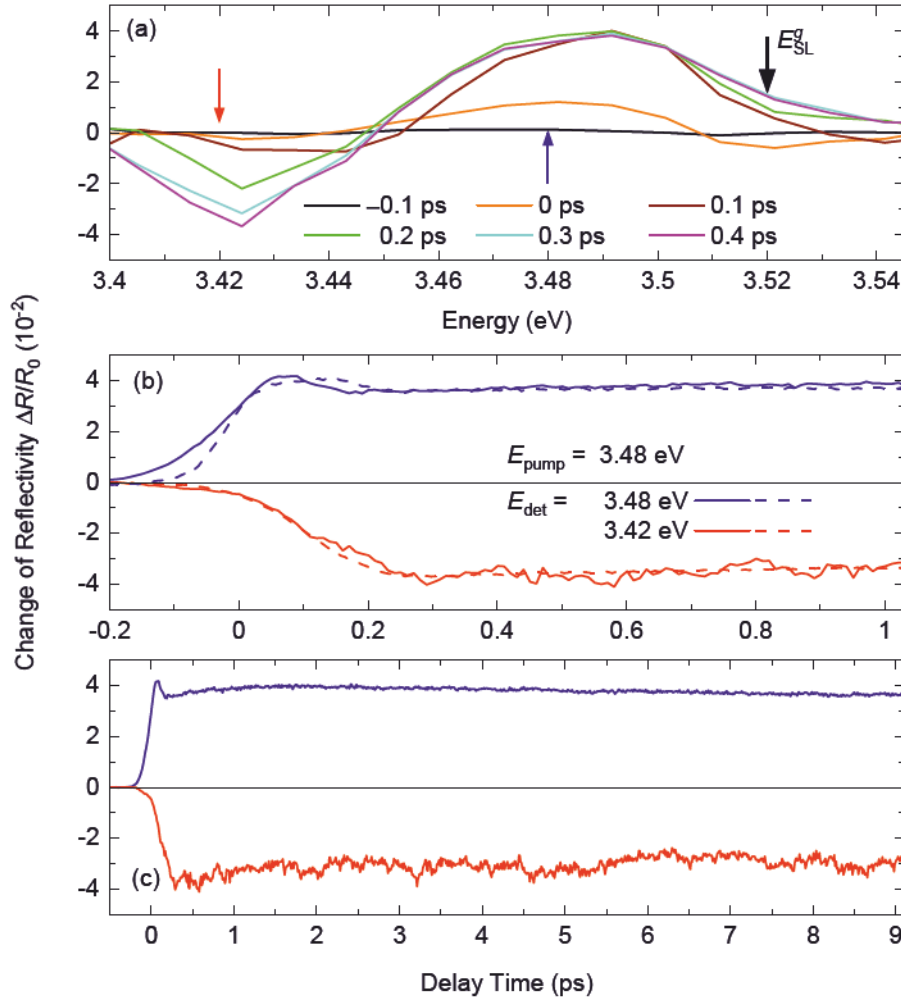


Abbildung 4.10.: (a) Transiente Spektren bei verschiedenen Verzögerungszeiten. Es lassen sich zwei Spektralbereiche mit positiver und negativer Reflektivitätsänderung unterscheiden. Die Pfeile zeigen die Photonenenergie der Transienten in (b) und (c), sowie die Bandlücke des Übergitters  $E_{SL}^g$  an. (b) Transienten an den Positionen der entsprechenden Pfeile bei einer Impulsenergie von 6 nJ (durchgezogene Linie) und 0,6 nJ (gestrichelte Linie), letztere ist auf die Signalgröße der 6 nJ-Daten normiert. (c) 6 nJ-Messungen über einen längeren Zeitbereich.



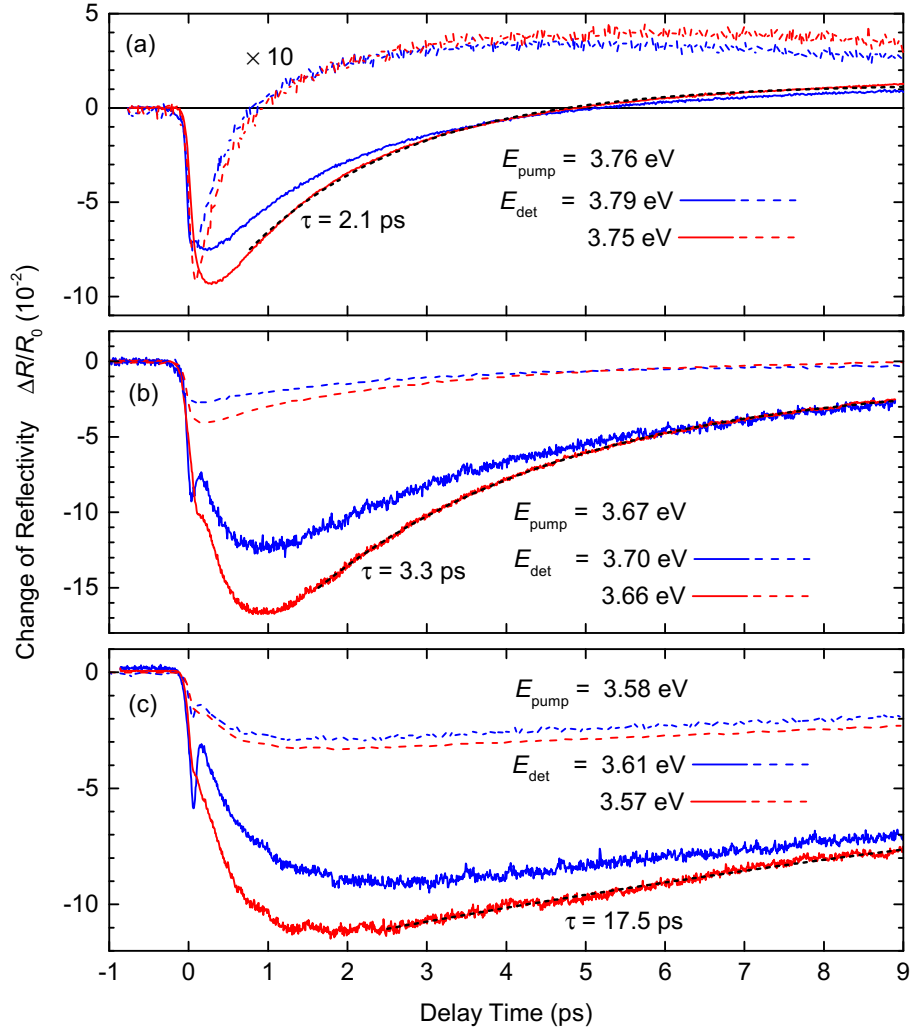


Abbildung 4.11.: Zeitaufgelöste Reflektivitätsänderungen bei Photonenenergien oberhalb der Übergitterbandlücke. Die durchgezogenen Linien entsprechen Anregeimpulse mit einer Energie von 6 nJ, die gestrichelten Linien einer Energie von 0,6 nJ. Die 0,6 nJ-Linie in Teilgrafik (a) wurde mit einem Faktor 10 multipliziert. Zusätzlich sind angepasste exponentielle Zerfallsfunktionen mit charakteristischen Zeitkonstanten gegeben.

Dieser Prozess ist schematisch in Abbildung 4.12 skizziert. Thermalisierte Elektron-Loch-Paare im Nichtgleichgewicht erhöhen das Quasi-Fermi-Niveau der Elektronen nach Gleichung (2.32). Die Fermi-Verteilung bei einer Temperatur von 300 K für ausgewählte 2D-Ladungsträgerdichten pro Quantenfilm sowie die Zustandsdichte der Elektronen sind in der Abbildung 4.12 (a) dargestellt. Aufgrund der hohen effektiven Masse der Löcher kann die Zustandsdichte der Elektronen näherungsweise als kombinierte Zustandsdichte betrachtet werden. Die modifizierte Fermi-Verteilung der Elektronen und Löcher, eingesetzt in Gleichung 2.46, bewirkt die Reduzierung des Absorptionskoeffizienten, wie es in Abbildung 4.12 (b) dargestellt ist. Daraus kann über die Kramers-Kronig-Beziehung die Änderung des Brechungsindex  $\Delta n$  errechnet werden [144]:

$$\Delta n(E) \propto \int_0^\infty \frac{\Delta \alpha(E')}{E'^2 - E^2} dE'. \quad (4.5)$$

Zur numerischen Berechnung beschränkte sich die Integration auf einen Energiebereich von 3 eV bis 4,5 eV. Die resultierende Brechungsindexänderung  $\Delta n$  ist in der Abbildung 4.12 (c) dargestellt. Unterhalb der Bandlücke des Übergitters bewirkt das Ausbleichen der Probe eine negative Änderung, oberhalb eine positive Änderung des Brechungsindex. Zusätzlich ist das Impulsspektrum mit den spektralen Positionen der Transienten aus Abbildung 4.10 dargestellt.

Des Weiteren muss noch angemerkt werden, dass eine Änderung des Realteils des Brechungsindex einen 100 mal größeren Einfluss auf die Reflektivität hat, als eine Änderung des Imaginärteils. Die Abschätzung ist im Anhang zu finden.

Die Antireflexbeschichtung aus SiN weist die geringste Reflektivität auf, wenn die reflektierte Intensität an der Grenzschicht Luft-SiN derjenigen der Grenzschicht SiN-Übergitter entspricht. Entsprechend den Fresnelschen Formeln für einen senkrechten Lichteinfall gilt für die geringste Reflektivität die Bedingung:

$$\left( \frac{n_{\text{SL}} - n_{\text{SiN}}}{n_{\text{SL}} + n_{\text{SiN}}} \right)^2 = \left( \frac{n_{\text{SiN}} - 1}{n_{\text{SiN}} + 1} \right)^2 \rightarrow n_{\text{SL}} = \sqrt{n_{\text{SiN}}}. \quad (4.6)$$

Der Brechungsindex der SiN-Beschichtung ist bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 350$  nm mit  $n_{\text{SiN}} = 2$  [145] größer als  $\sqrt{n_{\text{SL}}}$  mit  $n_{\text{SL}} = 2,7$  für GaN [136], weshalb eine Erhöhung des Brechungsindex des Übergitters die Reflektivität der Antireflexbeschichtung verringert. Dies steht im Widerspruch zu den Erwartungen, da ohne Beschichtung eine positive Brechungsindexänderung des Übergitters auch eine positive Reflektivitätsänderung bewirkt. Dies führt zu einem Vorzeichenwechsel der Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  und es gilt somit:

$$\Delta n_{\text{SL}} < 0 \rightarrow \Delta R/R_0 > 0, \quad (4.7)$$

$$\Delta n_{\text{SL}} > 0 \rightarrow \Delta R/R_0 < 0. \quad (4.8)$$

Der Vergleich der Reflexionsspektren der beschichteten und unbeschichteten Struktur in Abbildung 4.9 (a) bestätigt dies, da sich das Vorzeichen der Steigungen in den Reflexionsspektren nahe des Interbandübergangs bei 3,5 eV unterscheidet.

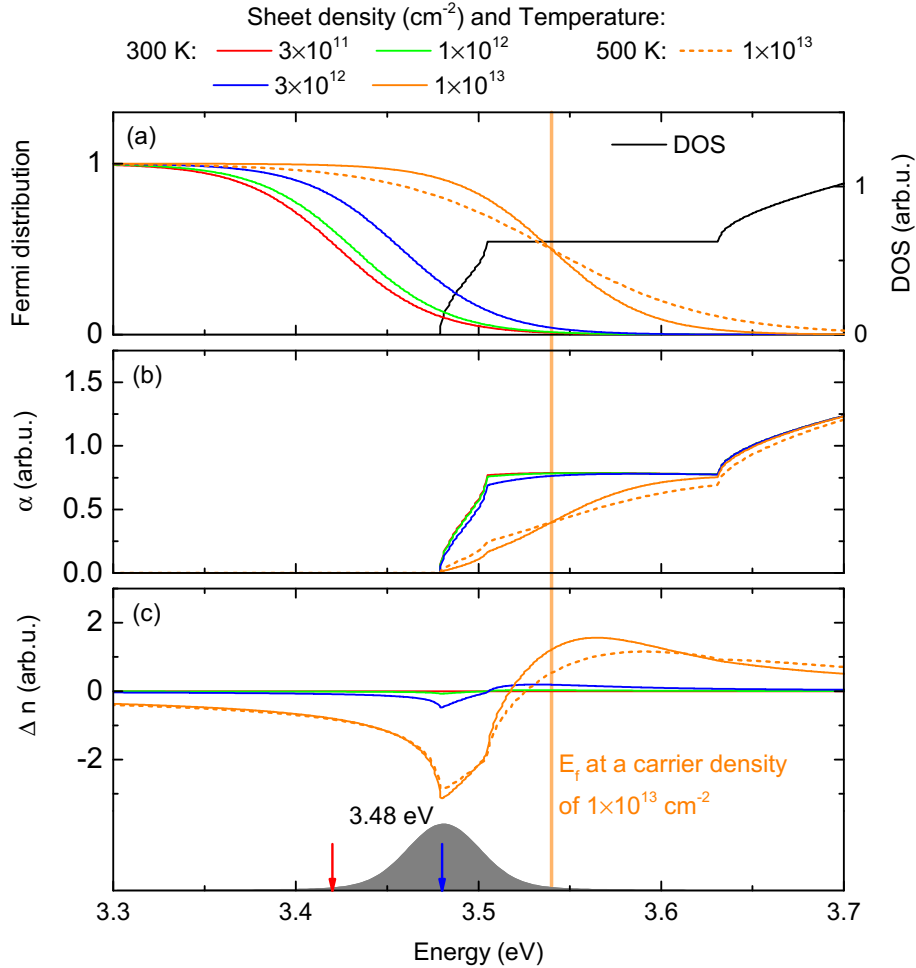


Abbildung 4.12.: (a) Fermi-Verteilung bei unterschiedlichen Ladungsträgerdichten und Ladungsträgertemperaturen. Die schwarze Linie entspricht der Zustandsdichte der Elektronen. (b) Berechnete Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  bei höheren Ladungsträgerdichten. (c) Der Realteil der Brechungsindexänderungen  $\Delta n$  verursacht durch die Reduktion der Absorptionskoeffizienten und berechnet über die Kramers-Kronig-Relation in Gleichung (4.5) ist negativ unterhalb und positiv oberhalb der Bandlücke. Zusätzlich ist ein Spektrum des Laserpulses mit den spektralen Positionen der Transienten in Abbildung 4.10 eingezeichnet.

Die positive Reflektivitätsänderungen des Transienten bei 3,48 eV in Abbildung 4.10 weist folglich auf eine negative Änderung des Brechungsindex  $\Delta n_{\text{SL}}$  hin. Die negativen Reflektivitätsänderungen bei allen sechs Photonenenergien in Abbildung 4.11 werden durch eine positive Brechungsindexänderung  $\Delta n_{\text{SL}}$  verursacht. Beide Erkenntnisse entsprechen somit den erwarteten Änderungen des Brechungsindex in Abbildung 4.12 (c), verursacht durch das Ausbleichen der Probe. Elektron-Loch-Paare werden direkt von dem Anregungsimpuls erzeugt, weshalb der Signalanstieg des 3,48 eV-Transienten in Abbildung 4.10 (b) innerhalb der Zeitauflösung des Experiments geschieht.

Die negative Reflektivitätsänderung unterhalb von 3,45 eV in Abbildung 4.10 deutet jedoch auf eine positive Brechungsindexänderung hin, die nicht durch das Besetzen der Interbandübergänge und das damit verbundene Ausbleichen der Probe erklärt werden kann. Eine mögliche Ursache dieser Reflektivitätsänderung ist die Besetzung zusätzlicher Zustände unterhalb der Bandlücke des Übergitters, die ein von Null verschiedenes Übergangsdipolmoment mit Zuständen im Valenzband besitzen und somit zur Absorption beitragen. Deren Besetzung resultiert folglich in einer Änderung der Absorption und des Brechungsindex, was sich in dem 3,42 eV-Transienten in Abbildung 4.10 widerspiegelt.

Eine Vielzahl an Defekten beeinflusst die elektronischen und optischen Eigenschaften in GaN-basierten Heterostrukturen [23]. Durch die spektrale Zuordnung in Abbildung 4.10 (a) kommt die Besetzung der Defekttypen in Frage, die sich im Spektralbereich ca. 100 meV unterhalb der Übergitterbandlücke befinden. Flache Störstellen bestehend aus Dotieratomen wie Silizium, Germanium und Kohlenstoff [146], oder auch Fluktuationen des Aluminiumgehalts [96] oder der Quantenfilmdicke [22] können Zustände nahe der Bandkante erzeugen, die bei ausreichender Dichte Defektbänder bilden können. Eine weitere potentielle Herkunft der Zustände zwischen der Bandlücke des Übergitters und der des Barrierenmaterials, d. h. GaN-Volumenmaterial, kann in der Unordnung der Aluminiumatome in den Barrieren liegen. Aufgrund der geringen Barrierendicke und der niedrigen Aluminiumkonzentration können sich Zustände an Orten geringerer Aluminiumkonzentration ausbilden, die energetisch unterhalb der Übergitterbandlücke liegen.

Eine derart modifizierte Zustandsdichte wurde in Berechnungen in unserer Arbeitsgruppe abgeschätzt [147]. Hierfür wurden Barrieren angenommen, in denen jedes Galliumatom mit einer Wahrscheinlichkeit von 18 % durch ein Aluminiumatom ersetzt wurde, skizziert in Abbildung 4.13 (a). In dieser Potentiallandschaft wurde die dreidimensionale Schrödingergleichung im Ortsraum in der Näherung der Einhüllendenfunktion (der eindimensionale Fall ist in Gleichung (2.22) gegeben) und unter der Bedingung der stetigen Wellenfunktion und der stetigen Stromdichte berechnet. Der eindimensionale Fall dieser beiden Bedingungen ist in Gleichung (2.25) und (2.26) zu finden. Die Auftragung der Anzahl der Energieeigenwerte pro Fläche über der Energie ergibt die durch die Unordnung der Aluminiumatome verursachte Zustandsdichte, dargestellt als grüne Punkte in Abbildung 4.13 (b). Die gleiche Rechnung mit homogenen Barrieren, d. h. die Bandlücke und effektive Masse sind in der Barriere konstant, ergibt die als schwarze Punkte dargestellte Zustandsdichte in Abbildung 4.13 (b), deren Bandkante gut mit der in Abbildung 4.5 (c) berechneten Zustandsdichte übereinstimmt. Aufgrund der relativ hohen effektiven Masse der Elektronen von  $0,2 m_e$  in GaN bildet sich die Verschmierung der Zustandsdichte verglichen mit ähnlichen GaAs-basierten Strukturen stärker aus, da die Wellenfunktionen nicht weiträumig über Aluminiumfluktuationen mitteln.

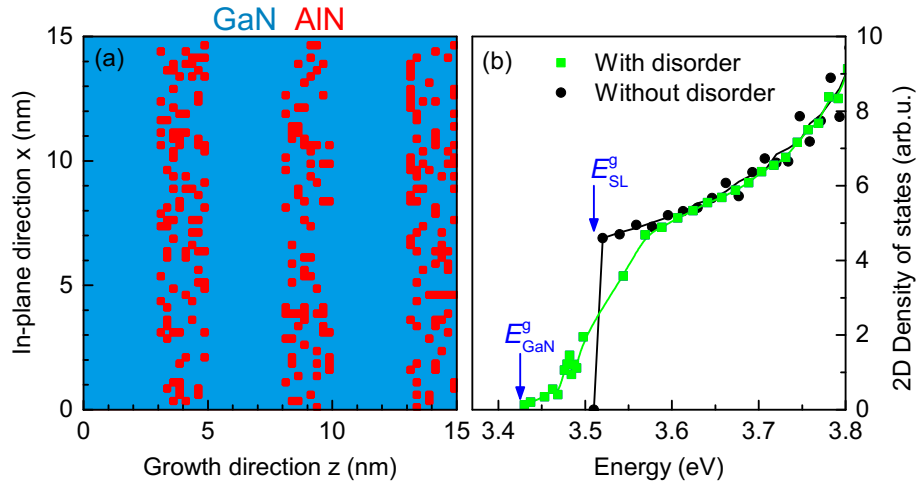


Abbildung 4.13.: (a) Modell zur Berechnung der Zustandsdichte um die Übergitterbandlücke. In den Barrieren seien 18 % der Galliumatome (blau) durch Aluminiumatomen (rot) statistisch ersetzt, (b) Zustandsdichte mit und ohne Berücksichtigung der Unordnung der Aluminiumatome in den Barrieren.

Das zeitliche Verhalten der photogenerierten Ladungsträger und die zugrunde liegenden Relaxationsmechanismen der angeregten Elektronen soll nun anhand der schematischen Skizzen in Abbildung 4.14 erläutert werden. Die ultrakurzen Laserimpulse generieren Elektron-Loch-Paare und sorgen für eine nichtthermische Verteilung an Elektronen im Leitungsband entsprechend der Überschussenergie des Anregimpulses (vgl. rote Linie in Abb. 4.14 (b)). Durch Streuung zwischen Ladungsträgern und durch Elektron-LO Phonon-Streuung relaxieren die Elektronen zur Unterkante des Leitungsbands und es stellt sich eine Fermi-Verteilung bei einer von der Gittertemperatur abweichenden Temperatur ein [148]. Allein durch Elektron-Elektron-Streuung ergibt sich eine Relaxationszeit von 12 fs [99,149], sodass dieser Prozess innerhalb der Pulsdauer geschieht. Gleichzeitig beginnt das Auffüllen der durch Unordnung verursachten Zustände unterhalb der Bandlücke des Übergitters, siehe Abbildung 4.14 (c). Der Vergleich der 3,42 eV- und 3,48 eV-Transienten in Abbildung 4.10 (b) zeigt einen um 150 – 200 fs verzögerten Anstieg des 3,42 eV-Transienten, der die Einfangkinetik der Elektronen aus den elektronischen Minibändern in die durch die Unordnung der Aluminiumatome in den Barrieren erzeugten zusätzlichen Zustände aufzeigt.

Währenddessen verliert das Elektron-Loch-Plasma über die Emission von Phononen Energie an das Kristallgitter, was sich in einem Abkühlen der Ladungsträger auf die Temperatur des Kristallgitters äußert. Dieser Abkühlprozesses wird im Folgenden anhand der Transienten bei höheren Photonenenergien in Abbildung 4.11 diskutiert, deren zeitliche Verläufe sich in zwei Effekte unterteilen lassen: Der erste ist die verzögerte Signalzunahme innerhalb der ersten 2 ps nach dem Laserimpuls, der zweite der anschließende Zerfall des Signals und der Verlauf zu positiven Reflektivitätsänderungen.

Durch die Streuung der Ladungsträger in Zustände geringerer Energie nimmt die Brechungsindexänderung um das Fermi-Niveau zu, wie in Abbildung 4.12 (c) der Vergleich

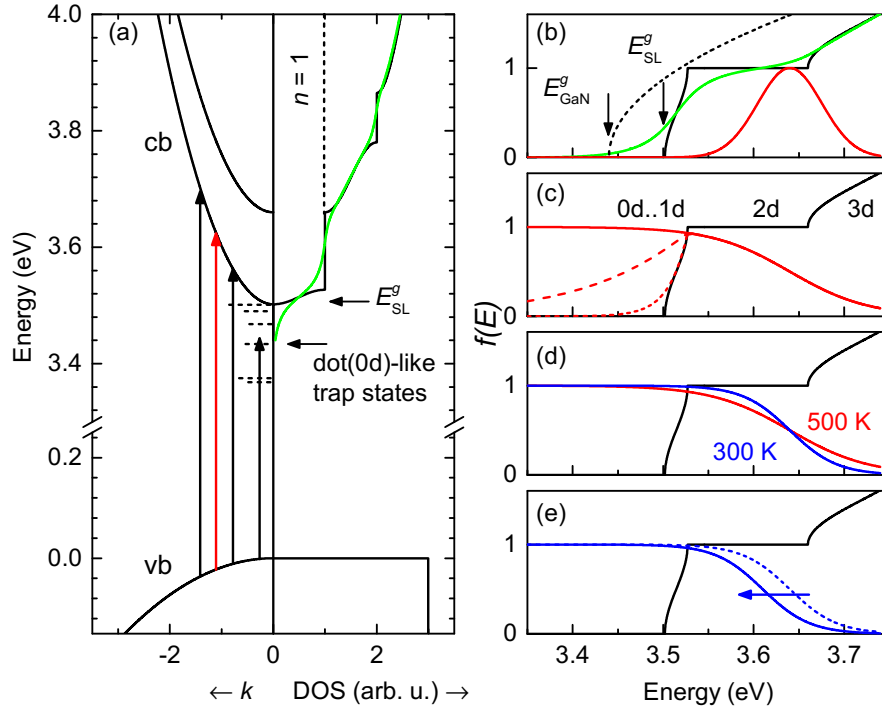


Abbildung 4.14.: (a) Dispersionsrelation in  $x, y$ -Richtung und Zustandsdichte des Übergitters. Die Unordnung der Aluminiumatome in den Barrieren verursacht eine Verschmierung der Zustandsdichte (grüne Linie). (b)-(e) zeitlicher Verlauf der Verteilungsfunktion der Ladungsträger (rote und blaue Linien). Zustandsdichte eines idealen Übergitters (schwarze Linie) und unter Berücksichtigung der Aluminiumunordnung (grüne Linie). (b) Nichtthermische Verteilung der Elektronen um die Anregungsenergie, (c) thermische Fermi-Verteilung der Elektronen durch Elektron-Elektron-Streuung (Thermalisierung), die gestrichelten Linien symbolisieren das Auffüllen der Zustandsdichte unterhalb der Unterkante des Minibands, (d) Kühlen der heißen Ladungsträger durch Phononemission, (e) Verschiebung der Fermi-Verteilung zu geringeren Energien aufgrund des Auffüllens weiterer Defekte in der Bandlücke.

der 300 K- und 500 K-Kurve bei einer Ladungsträgerkonzentration von  $n = 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  zeigt. Dies spiegelt sich in einer verzögerten Signalzunahme wider. Die Verzögerungszeit variiert zwischen 2 ps bei Photonenenergien nahe der Bandkante in Abbildung 4.11 (c) und 200 fs bei Photonenenergien von 3,75 eV in Abbildung 4.11 (a).

Der Abkühlprozess der angeregten Ladungsträger bei Ladungsträgertemperaturen oberhalb von 70 K geschieht hauptsächlich durch LO-Phononemission [150], dem in polaren Materialien wie GaN die Fröhlich-Wechselwirkung zugrunde liegt. Im Folgenden soll die Dynamik dieses Abkühlprozesses abgeschätzt werden. Für die Energiedichte des Elektron-Loch-Plasmas gilt:

$$E_{ges} = \int_0^{\infty} D_e(E) \cdot f_e(E, \mu_e, T) \cdot E + D_{hh}(E) \cdot f_{hh}(E, \mu_{hh}, T) \cdot E \cdot dE. \quad (4.9)$$

$D_e(E)$  ( $D_{hh}(E)$ ) ist die 2D-Zustandsdichte eines Quantenfilms und  $f_e(E, \mu_e, T)$

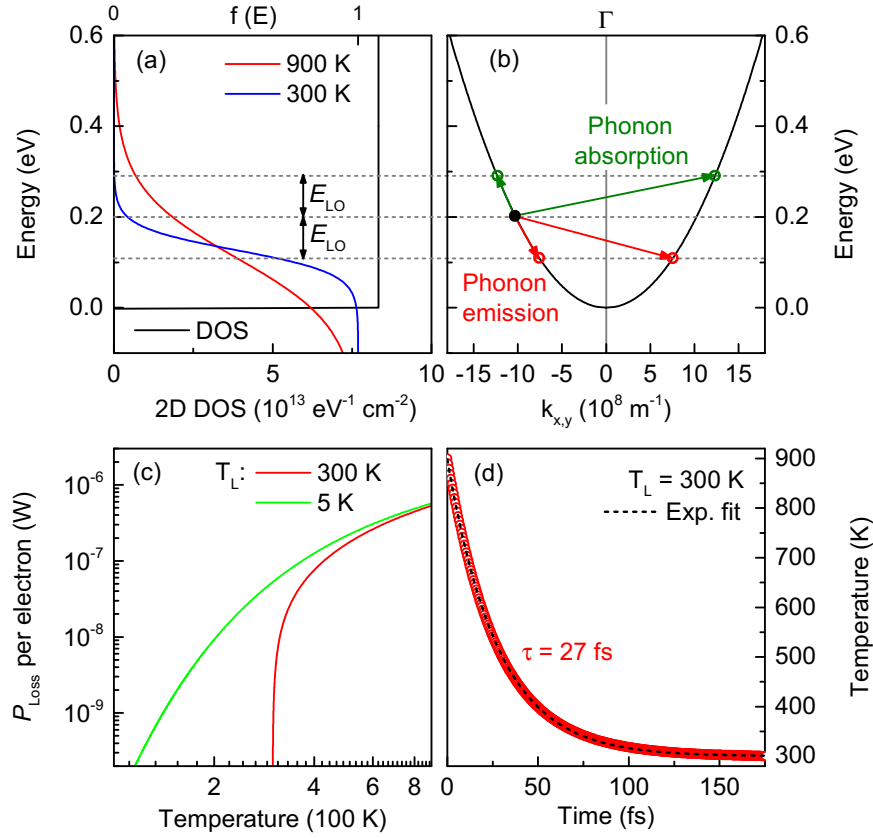


Abbildung 4.15.: (a) Fermi-Verteilungen (rote und blaue Linie) bei zwei verschiedenen Temperaturen des Elektronengases und Zustandsdichte (DOS) eines Quantenfilms (schwarze Linie), (b) elektronische Bandstruktur am  $\Gamma$ -Punkt mit Emission oder Absorption eines LO-Phonons, (c) Energieverlustrate pro Elektron  $P_{\text{Loss}}$  durch LO-Phononemission über die Fröhlich-Wechselwirkung bei einer Gittertemperatur von  $T_L = 300 \text{ K}$  und  $T_L = 5 \text{ K}$ , (d) zeitlicher Verlauf der Trägertemperatur bei einer Gittertemperatur von  $T_L = 300 \text{ K}$ . Ein exponentieller Fit ergibt eine mittlere Abkühlzeit von 27 fs. Allen Berechnungen liegt eine Ladungsträgerdichte von  $n = 10^{13} \text{ cm}^{-2}$  pro Quantenfilm zugrunde.

$(f_{hh}(E, \mu_{hh}, T))$  die Fermi-Verteilung der Elektronen (schweren Löcher). Die Phononemission über die Wechselwirkung mit Elektronen dominiert über derjenigen mit Löchern und sorgt somit hauptsächlich für den Energieverlust des angeregten Elektron-Loch-Plasmas [97]. Mit Fermis goldener Regel lässt sich die resultierende Energieverlustrate berechnen, die sich entsprechend Abbildung 4.15 (a) und (b) aus Phononemission und Phononabsorption zusammensetzt:

$$\frac{dE_{ges}(T)}{dt} = W_0 \int_0^\infty \underbrace{(D_e(E) \cdot f_e(E, \mu_e, T) \cdot (1 - f_e(E - E_{LO}, \mu_e, T)) \cdot (g(E_{LO}, T_L) + 1))}_{\text{Phononemission}} - \underbrace{D_e(E) \cdot f_e(E - E_{LO}, \mu_e, T) \cdot (1 - f_e(E, \mu_e, T)) \cdot g(E_{LO}, T_L)}_{\text{Phononabsorption}} dE. \quad (4.10)$$

$g(E_{LO}, T_L)$  ist die Bose-Einstein-Verteilung der LO-Phononen bei einer Gittertemperatur  $T_L$ . Mit der relativen Permittivität  $\varepsilon_r^\infty = 5,35$  [41] bei hohen Frequenzen und der statischen relativen Permittivität  $\varepsilon_r^s = 8,9$  [41] gilt für die Energieverlustrate  $W_0$  eines Einzelstreuereignisses in einem Quantenfilm [21, 151]:

$$W_0 = \frac{E_{LO}}{\tau_{LO}^{2D}}, \quad \text{mit} \quad (\tau_{LO}^{2D})^{-1} = \frac{\pi}{2} (\tau_{LO}^{3D})^{-1} = \frac{e^2 \sqrt{2m^* E_{LO}}}{8\hbar^2 \varepsilon_0} \left( \frac{1}{\varepsilon_r^\infty} - \frac{1}{\varepsilon_r^s} \right). \quad (4.11)$$

In Abbildung 4.15 (c) ist die berechnete temperaturabhängige Energieverlustrate pro Elektron  $P_{Loss}$  nach Gleichung (4.10) bei einer Gittertemperatur von  $T_L = 5$  K und  $T_L = 300$  K dargestellt. Zur Vereinfachung wurden wegen der geringen Aluminiumkonzentration in der Heterostruktur nur GaN LO-Phononen berücksichtigt und ihre  $k$ -Abhängigkeit vernachlässigt. Die daraus berechnete transiente Temperatur des Elektron-Loch-Plasmas ist in Abbildung 4.15 (d) für eine Gittertemperatur von  $T_L = 300$  K dargestellt. Bei einer Überschussenergie der optischen Anregung von 0.2 eV pro Photon müsste die Fermi-Verteilung der Elektronen und Löcher eine Temperatur von  $\sim 900$  K aufweisen. Dies ist die höchstmögliche Temperatur; die tatsächliche Trägertemperatur ist geringer, da während der Impulsdauer bereits LO-Phononen emittiert werden. Ein exponentieller Fit an die berechnete Kurve ergibt eine Zeitkonstante von 27 fs. Das Abkühlen der Ladungsträger ist jedoch ein nichtexponentieller Effekt, da die Wahrscheinlichkeit des Streuereignisses zwischen zwei elektronischen Zuständen, deren energetische Differenz der LO-Phononenergie entspricht, von der Temperatur der Fermi-Verteilung der Elektronen abhängt. Dies äußert sich in einer starken Abnahme der Energieverlustrate pro Elektron bei niedrigen Temperaturen, siehe Abbildung 4.15 (c).

Der Vergleich des berechneten Temperaturverlaufs in Abbildung 4.15 (d) mit dem beobachteten um 2 ps verzögerten Anstieg des 3,57 eV-Transienten in Abbildung 4.11 (c) zeigt einen sehr viel langsameren Kühlprozess, der auf heiße Phononen zurückzuführen ist [101, 102]. Durch die hohe Emissionsrate von LO-Phononen stellt sich eine nichtthermische LO-Phonon-Verteilung ein, die eine Reabsorption der LO-Phononen durch Elektronen über die Fröhlich-Wechselwirkung begünstigt. Dies bewirkt eine Energiezufuhr zu den angeregten Elektronen und verlangsamt den Kühlprozess [152, 153]. Die Kühlrate des Elektron-Loch-Plasmas hängt somit maßgeblich von der Lebensdauer von LO-Phononen ab. Gerade in GaN in der Wurtzit-Struktur ist der Zerfall der LO-Phononen in zwei niederenergetische akustische Phononen blockiert, was die Lebensdauer der LO-Phononen verlängert [69, 72], vgl. auch Abschnitt 2.4.2. Die Lebensdauer von LO-Phononen in GaN liegt bei Raumtemperatur zwischen 3 ps und 4 ps [154, 155].



Eine um den Faktor zehn geringere Anregeimpulsenergie von 0,6 nJ verringert bei allen drei Photonenenergien die zeitliche Verzögerung des Signalanstiegs, siehe gestrichelte Linien in Abbildung 4.11. Auch dies entspricht dem Bild, dass diese Verzögerung auf die reduzierte Kühlrate der Ladungsträger durch Reabsorption heißer Phononen zurückzuführen ist, da eine geringere Anregungsdichte die Dichte nichtthermischer Phononen reduziert.

Bei Temperaturen unter 70 K geschieht das Kühlen der Ladungsträger in GaN hauptsächlich über die Emission akustischer Phononen, basierend auf der Wechselwirkung über das Deformationspotential oder die piezoelektrische Wechselwirkung. Die Energieverlustrate bei einer Trägertemperatur von 50 K beträgt  $\sim 10^{-13}$  W pro Elektron und ist somit sechs Größenordnungen kleiner als bei Raumtemperatur [150]. Diese geringere Verlustrate spiegelt sich in dem langsameren Kühlprozess bei tiefen Temperaturen in Abbildung 4.6 wider.

Die anschließende Reduktion des Signals in Abbildung 4.11 (a) bis (c) geschieht mit charakteristischen Zeitkonstanten zwischen 2 ps bei 3,75 eV und 18 ps bei 3,57 eV, die durch eine Verringerung der Ladungsträgerdichte verursacht wird. Dies äußert sich in einer Verschiebung des Fermi-Niveaus zu geringeren Energien, wie es in Abbildung 4.14 (e) dargestellt ist. Strahlende und nichtstrahlende Rekombination reduzieren die Ladungsträgerdichte, wobei entsprechend den TRPL-Daten aus Abschnitt 4.1.1 auf dieser Zeitskala das Einfangen der Ladungsträger in nichtstrahlende sättigbare Rekombinationszentren dominiert. Der Verlauf der Reflektivitätsänderung zu positiven Werten in Abbildung 4.11 (a) kann durch Bandlückenrenormierung verursacht werden, die eine Verschiebung des Reflektivitätsspektrums zu niedrigeren Energien bewirkt. Dies resultiert bei Energien oberhalb von 3,55 eV in einer Zunahme der Reflektivität, vgl. Abbildung 4.9. In Transmissionsmessungen wurde ein stufenförmiger Beitrag zum transienten Signal in Anrege-Abfrage-Experimenten ebenfalls der Bandlückenrenormierung zugeschrieben [98, 153].



---

## Kohärente Dynamik zonengefalteter Phononen in Übergitterstrukturen

---

Der folgende Abschnitt befasst sich mit der Untersuchung der piezoelektrischen Wechselwirkung zwischen Elektronen und kohärenten zonengefalteten Phononen. Durch die Faltung der akustischen und optischen Zweige in die Mini-Brillouin-Zone entstehen zusätzliche phononische Zustände nahe des Zentrums der Brillouin-Zone, die aufgrund des verglichen mit der Brillouin-Zone sehr kleinen Wellenvektors von Licht über Licht-Materie-Wechselwirkung angeregt werden können.

Eine mögliche Analysemethode der phononischen Bandstruktur basiert auf der Raman-Spektroskopie, siehe Abschnitt 2.4.3, die bereits Anfang der 80er Jahre zur Untersuchung zonengefalteter Phononen in GaAs-basierten Übergittern diente [156–158]. Die Frequenzverschiebung und Richtung des gestreuten Lichts gibt Aufschluss über die Frequenz und den Wellenvektor der Raman-aktiven Moden. Spontane Raman-Streuung erzeugt inkohärente optische oder zonengefaltete Phononen. Die Anregung mit zwei kohärenten Laserstrahlen mit einer Energiedifferenz der Photonen, die der Energie eines optischen Phonons entspricht, kann über stimulierte Raman-Streuung kohärente Gitterschwingungen erzeugen. In Rückstreuung werden Phononenzweige bei  $q \approx 2k_{\text{Licht}}$  angeregt, wobei  $q$  der Wellenvektor des Phonons und  $k_{\text{Licht}}$  der des Lichts im Übergitter ist. Die Vorwärtstreuung wirkt auf die Moden bei  $q = 0$  mit gerader Verzerrung bezüglich der Halbiebungsebene eines Quantenfilms [80], siehe Abschnitt 2.4.3.

Die Messung der zonengefalteten Phononen in der Zeitdomäne mittels Anrege-Abfrage-Spektroskopie weist nicht nur die Existenz der Phononen im Allgemeinen nach, sondern ermöglicht auch die Analyse der Kohärenz [159, 160]. Beides muss gegeben sein, um durch kohärente Phononen verursachte Oszillationen der transienten Transmission oder Reflexion messen zu können. Phononen werden dabei impulsiv angeregt, d. h. der anregende Laserimpuls ist kürzer als die Periodendauer einer Gitterschwingung. Die impulsive Anregung erzeugt eine kohärente Auslenkung der Atome, d. h. eine Mode ist mit einer großen Anzahl an Phononen besetzt [161]. Die impulsive Raman-Streuung stellt dabei einen möglichen Anregungsmechanismus dar.

Bei einer resonanten Anregung des Übergitters durch einen ultrakurzen Laserimpuls werden Elektronen aus bindenden Orbitalen im Valenzband in antibindende Orbitale im Leitungsband gehoben. Dadurch wird instantan eine Verspannung mit der Periodizität des Übergitters erzeugt, was folglich kohärente Phononen mit einer Wellenlänge gleich der Übergitterperiodizität anregt, d. h. zonengefaltete Phononen bei  $q = 0$ . In der Literatur wird dieser Effekt häufig als *Displacive Excitation of Coherent Phonons* (DECP) bezeichnet [162–164].

Bei bestimmten Wachstumsrichtungen können in polaren Halbleitern kohärente Phononen zusätzlich über die piezoelektrische Wechselwirkung erzeugt werden. In Übergittern

dieser Materialklasse entsteht aufgrund unterschiedlicher Gitterkonstanten von Barrieren und Quantenfilmen eine Verzerrung, die ein piezoelektrisches Feld bewirkt. Die durch einen Laserimpuls erzeugten Ladungsträger können diese wachstumsbedingten piezoelektrischen Felder abschirmen, was eine instantane Änderung der Verspannung verursacht [165]. Diese Änderung hat die gleiche Periodizität wie das Übergitter, weshalb auch in diesem Fall die erzeugten kohärenten Phononen einen Wellenvektor von  $q = 0$  aufweisen. Dies wurde nicht nur in GaN-basierten Übergittern [165–171], sondern auch in GaAs-basierten MQW-Strukturen beobachtet, welche in [111]-Richtung gewachsen wurden [172].

### Verstärkung kohärenter Phononen

Es wurde gezeigt [173, 174], dass ein elektrischer Strom durch das Übergitter eine Verstärkung kohärenter zonengefalteter Phononen bewirken kann. Der elektrische Strom führt zu einer Besetzungsinversion der elektronischen Zustände im Miniband, sodass kohärente Phononen über stimulierte Emission erzeugt werden können.

Für ein schwach gekoppeltes Übergitter, d. h. wenn die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen in den Barrieren klein ist gegen die in den Quantenfilmen, kann durch das Anlegen einer Spannung die Minibandstruktur aufgebrochen werden. Dadurch können sich in Wachstumsrichtung lokalisierte Zustände, sogenannte Wannier-Stark-Zustände in den Quantenfilmen ausbilden. Der Ladungstransport findet nun über Tunnelprozesse durch die Barriere statt. Zur Impuls- und Energieerhaltung umfasst dieser Prozess die Emission oder Absorption eines zonengefalteten Phonons. Ist der Energieunterschied der Fermi-Niveaus in zwei benachbarten Quantenfilmen größer als die Phononenergie, so liegt eine Besetzungsinversion vor, die eine stimulierte Emission zonengefalteter Phononen ermöglicht [19, 174].

In stark gekoppelten Übergittern, die aufgrund ihrer größeren Minibandbreite einen stärkeren Intraminibandtransport der Ladungsträger ermöglichen, kann die Verstärkung auch über den sogenannten Cherenkov-Mechanismus erfolgen [175]. Dabei werden Elektronen in Wachstumsrichtung beschleunigt, was die Verteilung der Elektronen zu höheren  $k$ -Vektoren verschiebt. Dies führt zu einer asymmetrischen Elektronenverteilung im  $k$ -Raum im gleichen Miniband. Übersteigt die kinetische Energie der Elektronen die der zonengefalteten Phononen, so werden Zustände besetzt, deren energetische Differenz zu Zuständen, die im Gleichgewicht besetzt wären, größer als die Energie der zonengefalteten Phononen ist. Im Falle einer Besetzungsinversion wird stimulierte Emission akustischer Phononen ermöglicht. Zonengefaltete Phononen, d. h. stehende Wellen im Übergitter, setzen sich aus zwei in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung propagierende Moden zusammen. Die stimulierte Emission über den Cherenkov-Mechanismus verstärkt dabei die Wellen, die in Richtung des elektrischen Stroms propagieren [176].

Diese Untersuchungen an GaAs-basierten Übergittern stellen somit einen wichtigen Schritt in Richtung der Entwicklung einer neuartigen Ultraschallquelle dar, die in der Literatur häufig SASER<sup>1</sup> genannt wird. Schallwellen im Terahertzbereich weisen – abhängig von der Schallgeschwindigkeit – eine Wellenlänge in der Größenordnung weniger Nanometer auf. Kohärente Phononen aus Übergittern könnten somit als Quelle für bildgebende Verfahren dienen, sodass Strukturen mit bisher unerreichter Auflösung zerstörungsfrei untersucht werden könnten [177]. Die zusätzliche Elektron-Phonon-Wechselwirkung im

---

<sup>1</sup>Analog zu Laser (engl.): *Sound Amplification by Stimulated Emission of Radiation*

Übergitter über piezoelektrische Effekte dürfte die Effizienz der Phononverstärkung durch einen Stromfluss erhöhen, weshalb der Untersuchung des Einflusses piezoelektrischer Eigenschaften auf kohärente Phononen eine besondere Bedeutung zukommt.

### Voruntersuchung einer GaN-basierten MQW-Struktur

Aufgrund sehr hoher piezoelektrischer Felder von bis zu 32 MV/cm [178] stellen GaN-basierte Übergitter eine potentielle Materialklasse für Bauteile zur Erzeugung kohärenter Phononen dar. Wachstumsbedingte strukturelle Defekte wie epitaktische Verspannungen und Fluktuationen der Kristallzusammensetzung und der Übergitterparameter bei geringen Periodendicken und hoher Periodenzahl liefern jedoch nicht die nötige Homogenität und Grenzflächenrauigkeit. So wurden beispielsweise in den Untersuchungen zur ultraschnellen Ladungsträgerdynamik in Abschnitt 4.2 keine durch zonengefaltete Phononen verursachten Oszillationen in der Reflektivitätsänderung beobachtet. Da die Perioden dieses Übergitters geringe Quantenfilmdicken von 2 nm und Barrierendicken von 3 nm aufweisen, wurde für Voruntersuchungen eine GaN-basierte MQW-Struktur mit größeren Quantenfilm- und Barrierendicken herangezogen. Diese verfügt über vier Perioden mit je einem Quantenfilm von 3,5 nm und einer Barriere von 7 nm und hat die Existenz kohärenter Phononen in GaN-basierten Strukturen gezeigt, wie im folgenden Abschnitt präsentiert wird.

Die Ergebnisse des Anrege-Abfrage-Experiments an der GaN-basierten Probe sind in Abbildung 5.1 dargestellt. Dabei wurde die in Abschnitt 3.1 vorgestellte  $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{N}/\text{GaN}$  MQW-Struktur untersucht. Für die Untersuchung diente der im Abschnitt 3.3.1 erläuterte Aufbau zur Anrege-Abfrage-Spektroskopie in Reflexionsgeometrie. Die Probe wurde resonant bei einer Photonenenergie von 2,95 eV und einer Impulsenergie 2,1 nJ angeregt. Dies resultiert in einer relativ hohen Photonendichte pro Impuls von  $10^{14} \text{ cm}^{-2}$ , was durch die Besetzung der Interbandübergänge schon zum Ausbleichen der Probe führen sollte. Bei einer Überschussenergie der Anregungsphotonen von 0,15 eV beträgt die maximale Ladungsträgerdichte nach Gleichung (2.31) in einem Quantenfilm  $n = 6,25 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ .

In Abbildung 5.1 (a) ist die transiente anregungsinduzierte Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0 = (R - R_0)/R_0$  dargestellt, wobei  $R$  die Reflexion mit Anregung und  $R_0$  ohne Anregung ist. Die Subtraktion einer exponentiellen Fitfunktion von der transienten Reflektivitätsänderung zeigt Oszillationen, die in Abbildung 5.1 (b) dargestellt sind. In piezoelektrischen Materialien können kohärente Phononen die Absorptionskante über den *quantum-confined Stark effect* zu höheren oder niedrigeren Energien variieren [166]. Wie schon in Abschnitt 4.2.2 diskutiert, ist diese Absorptionsreduktion über die Kramers-Kronig-Relation mit dem Brechungsindex und somit auch mit der Reflexionsänderung verknüpft.

An die Differenzwerte der Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  wurde eine Schwingungsfunktion mit der Frequenz  $f$  und einer Amplitude  $R_{\text{FP}}$  angepasst, die mit einer charakteristischen Zeitkonstante  $\tau_{\text{FP}}$  exponentiell abfällt:

$$\frac{\Delta R(t)}{R_0} = R_{\text{FP}} \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\text{FP}}}\right) \cdot \cos(2\pi f t - \phi). \quad (5.1)$$

Die Anpassung ergibt eine Frequenz von  $f = 840 \text{ GHz}$ . Die Abbildung 5.1 (c) zeigt die Periodendauer der kohärenten Phononen über der Übergitterperiodizität mit weiteren Un-

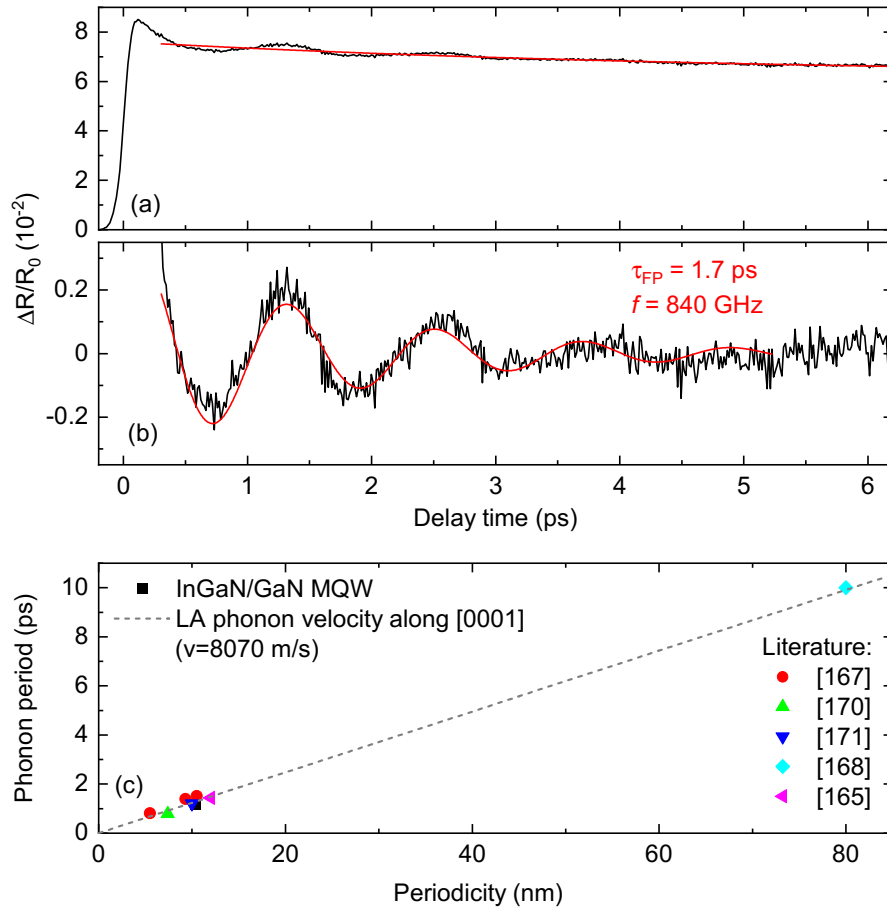


Abbildung 5.1.: (a) Transiente Reflektivitätsänderung  $\Delta R/R_0$  bei einer Anrege- und Abfragewellenlänge von 420 nm. (b) Nach der Subtraktion einer angepassten Exponentialfunktion zeigen die Messdaten Oszillationen, die durch zonengefaltete Phononen verursacht werden. Eine Sinusfunktion mit exponentiell abnehmender Amplitude zeigt eine Frequenz von  $f = 840$  GHz und eine charakteristische Zerfallszeit von  $\tau_{FP} = 1,7$  ps. (c) Vergleich der Periodendauer  $1/f$  mit Literaturwerten. Näherungsweise zeigt sich ein linearer Zusammenhang der Periodendauern mit den MQW-Perioden. Die gestrichelte Linie entspricht der Ausbreitungsgeschwindigkeit von LA-Phononen entlang der [0001]-Richtung in GaN-Volumenmaterial.

tersuchungen an GaN-basierten Strukturen. Die gestrichelte Linie gibt einen linearen Zusammenhang zwischen der Übergitterperiode und der Periodendauer ( $1/f$ ) wieder, deren Steigung der Ausbreitungsgeschwindigkeit von LA-Phononen in [0001]-Richtung in GaN Volumenmaterial entspricht. Die Gerade mit einer Ausbreitungsgeschwindigkeit nach Gleichung (2.15) von 8070 m/s gibt somit die Propagationsdauer durch eine Übergitterperiode an. Die Übereinstimmung der gemessenen Frequenz in Abbildung 5.1 (b) mit den Literaturwerten ist ein deutliches Indiz dafür, dass kohärente zonengefaltete Phononen die Oszillation verursachen. Leichte Abweichungen zwischen der so berechneten Propagationsdauer und der tatsächlichen Periodendauer kann auf die unterschiedlichen Schallgeschwindigkeiten in Barriere und InGaN-Quantenfilmen, sowie die Herausbildung einer phononischen Bandstruktur mit Bandlücken bei einer größeren Anzahl an Quantenfilmen und der daraus resultierenden Abweichung der Frequenzen bei  $q = 0$  von der geometrischen Lösung zurückgeführt werden.

Des Weiteren ist in den Oszillationen in Abbildung 5.1 (b) eine sehr starke Abnahme der Amplitude mit einer charakteristischen Zeitkonstante von  $\tau_{FP} = 1,7$  ps zu beobachten. Zur Messung kohärenter Phononen müssen phononische Zustände der zonengefalteten Phononen zusätzlich zur thermischen Population besetzt sein und es muss eine feste Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Zuständen der zonengefalteten Phononen existieren. Die Abnahme der Amplitude kann daher auf folgenden Prozessen basieren:

- Aufgrund der sehr geringen Anzahl der Schichten gibt es zusätzliche Phononzustände bei  $q = 0$ , die sich in der Bandlücke der phononischen Bandstruktur eines unendlich ausgedehnten Übergitters befinden. Diese Inhomogenität resultiert in einer schnellen Dephasierung der kohärenten Phononen [167].
- Die begrenzte Anzahl an Schichten und die geringe Dicke des gesamten Übergitters verkürzt auch die Zeit, bis kohärente Phononen das Übergitter verlassen haben [179].
- Über die zusätzliche piezoelektrische Elektron-Phonon-Wechselwirkung können Ladungsträger durch zonengefaltete Phononen bewegt werden. Der Widerstand dieses elektrischen Stroms stellt einen weiteren Dämpfungsmechanismus dar.

Um nun den Einfluss der piezoelektrischen Wechselwirkung auf kohärente zonengefaltete Phononen zu ermitteln, wurden zwei GaAs-basierte Übergitter untersucht. Beide Übergitter verfügen über die gleichen Parameter, wurden jedoch in verschiedene Richtungen gewachsen, eines in [100]-, das andere in [111]-Richtung. Nur das in [111]-Richtung gewachsene Übergitter weist piezoelektrische Felder bei einer von LA-Phononen in [111]-Richtung verursachten Verzerrung auf.

Im folgenden Kapitel wird zuerst auf die Ladungsträgerkinetik beider GaAs-basierten Proben eingegangen, die mittels TRPL bei zwei verschiedenen Photonenenergien des Anregungsimpulses von 3,1 eV und 1,61 eV untersucht wurden. Anschließend werden die Messergebnisse und Interpretationen zu zonengefalteten Phononen präsentiert, die mittels Anrege-Abfrage-Spektroskopie in Reflexionsgeometrie erlangt wurden.

## 5.1. Spektroskopische Analysen an GaAs-basierten Übergittern

In Abbildung 5.2 sind TRPL-Daten dargestellt, die mit dem in Abschnitt 3.2.1 beschriebenen Messaufbau bei Raumtemperatur und mit einer Anregung oberhalb des Interbandübergangs bei einer Photonenenergie von  $E_{\text{exc}} = 3,1$  eV gemessen wurden. Die zeitintegrierten und normierten Spektren sind in den Teilgrafiken 5.2 (a) und (b) bei drei unterschiedlichen Ladungsträgerdichten dargestellt. In beiden Proben sind zwei Emissionskomponenten bei 1,43 eV und 1,48 eV erkennbar, wobei bei der [100]-Probe in Abbildung 5.2 (a) die Linie bei 1,43 eV bei geringeren Anregungsleistungen im Verhältnis zur Intensität der 1,48 eV-Emission deutlich zunimmt.

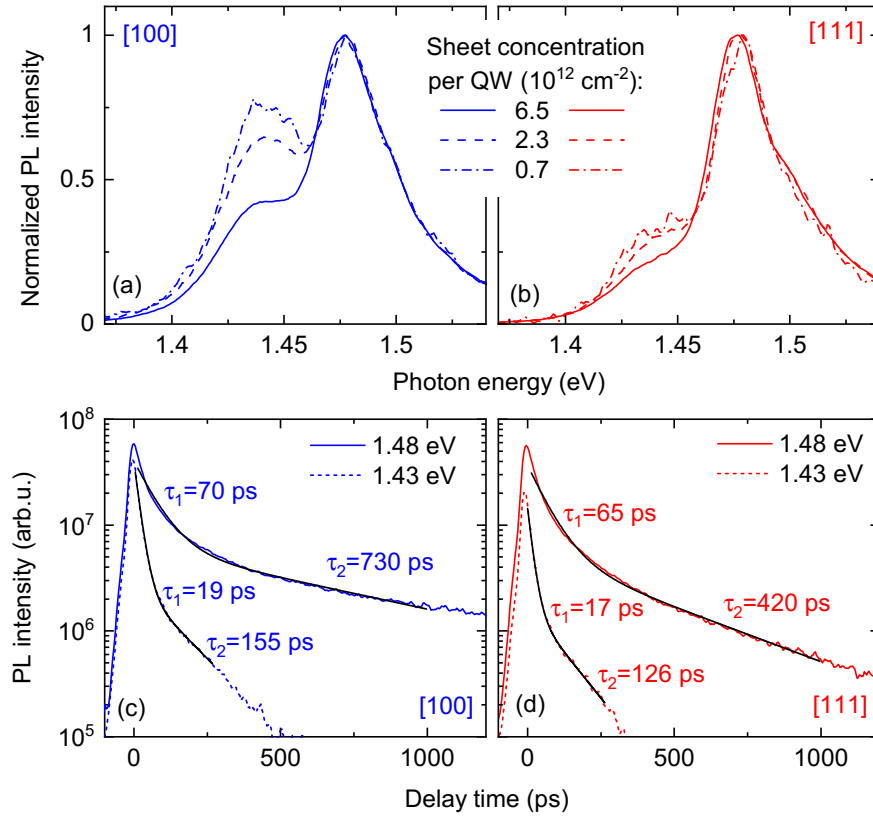


Abbildung 5.2.: Spektren der TRPL-Messung der [100]-Probe in (a) und [111]-Probe in (b) bei einer Anregungsenergie von  $E_{\text{exc}} = 3,1$  eV und unterschiedlichen Ladungsträgerkonzentrationen pro Quantenfilm. Transiente PL der Linien 1,43 eV und 1,48 eV der [100]-Probe in (c) und [111]-Probe in (d) bei einer Ladungsträgerkonzentration von  $6,5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ . Die Zerfallszeiten geben die Ergebnisse biexponentieller Fitfunktionen an.

Berechnungen der elektronischen Minibandstruktur entsprechend Gleichung (2.27) mit effektiven Elektronenmassen von  $m_{\text{e,GaAs}}^* = 0,063 m_0$  und  $m_{\text{e,AlAs}}^* = 0,15 m_0$  [29] und effektiven Massen schwerer Löcher von  $m_{\text{hh,GaAs}}^* = 0,62 m_0$  und  $m_{\text{hh,AlAs}}^* = 0,76 m_0$  [180] ergeben für das Übergitter einen optischen Interbandübergang von 1,47 eV, weshalb die PL-Linie bei 1,48 eV diesem Übergang zugeordnet werden kann.



Da AlAs an Luft instabil ist, wurde auf das Übergitter eine 30 nm dicke GaAs Deckschicht gewachsen. Das Confinement in dieser Schicht ist 6,6 meV für Elektronen und 0,7 meV für schwere Löcher. Mit dieser Abschätzung ergibt sich unter Berücksichtigung der Bandlücke von GaAs von 1.424 eV [55] ein optischer Übergang mit einer Energie von ca. 1,43 eV, was gut mit den niederenergetischen Linien beider Proben in Abbildung 5.2 (a) und (b) übereinstimmt. Die dazugehörigen Transienten sind in Abbildung 5.2 (c) für die [100]-Probe und in (d) für die [111]-Probe dargestellt. Sowohl die 1,43 eV- als auch die 1,48 eV-Linien in beiden Proben zeigen einen nichtexponentiellen Zerfall, der mit einer bi-exponentiellen Zerfallsfunktion gut beschrieben werden kann. Hierbei fällt auf, dass sowohl die schnelle als auch die langsamere Komponente der niederenergetischen Emissionslinie kürzere Zeitkonstanten aufweisen als die Emission bei 1,48 eV. Ein Nachfüllen der Zustände in der Deckschicht durch einen Ladungstransport vom Übergitter zur Deckschicht findet folglich nur in geringem Maße statt.

Der Absorptionskoeffizient von GaAs bei einer Anregungsenergie von  $E_{\text{exc}} = 3,1$  eV beträgt  $\alpha_{3,1\text{ eV}} = 7 \times 10^5 \text{ cm}^{-2}$  [181], was einer Eindringtiefe von 15 nm entspricht. Dies muss mit einer gewissen Vorsicht betrachtet werden, da der Absorptionskoeffizient von der Zustandsdichte abhängt, die wiederum durch die AlAs-Barrieren im Übergitter verringert wird, siehe auch Abschnitt 2.4.3. Nichtsdestotrotz werden hauptsächlich die GaAs-Deckschicht und die unmittelbar dahinterliegenden Quantenfilme angeregt. In GaAs ist die schnelle Rekombinationszeit auf das Einfangen der Ladungsträger in nicht-strahlende Rekombinationszentren zurückzuführen, die maßgeblich Oberflächenzustände sind [182]. Diese befinden sich in der GaAs-Deckschicht, sodass die Ladungsträgerkinetik der niederenergetischen Linie bei 1,43 eV stärker beeinflusst wird. Dieser schnelle Zerfall ist in der [111]-Probe etwas ausgeprägter, siehe Abbildung 5.2 (c) und (d), was auf eine höhere Dichte an nichtstrahlenden Rekombinationszentren schließen lässt.

In Abbildung 5.3 (a) sind die Transienten einer TRPL-Messung der [100]-Probe mit Anregungsphotonenenergien von  $E_{\text{exc}} = 1,6$  eV dargestellt. Der Absorptionskoeffizient von GaAs bei dieser Photonenenergie beträgt  $\alpha_{1,6\text{ eV}} = 1 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$  [181], sodass bei einer resultierenden Eindringtiefe von 1  $\mu\text{m}$  Elektron-Loch-Paare über das gesamte Übergitter erzeugt werden und der relative Einfluss der Oberflächenzustände auf die Ladungsträgerkinetik gering ist. Alle Transienten zeigen näherungsweise einen monoexponentiellen Zerfall. In Abbildung 5.3 (b) ist die charakteristische Zerfallszeit im Zeitbereich zwischen 50 ps und 1.7 ns nach dem Puls aufgetragen. Die gemessenen Rekombinationszeiten liegen zwischen 4 ns bei  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  und 0,9 ns bei  $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ . Die langsame Komponente der 1,48 eV-Linie der TRPL-Messung mit einer Anregungsenergie von 3,1 eV (Abb. 5.2 (c)) liegt auch in der Größenordnung des Zerfalls bei hohen Anregungsdichten mit 1,6 eV-Photonen. Von ähnlichen Werten der strahlenden Rekombinationszeit von Ladungsträgern in GaAs/AlAs-MQW-Strukturen wurde auch in der Literatur berichtet [183–185].

Die Rekombinationsrate von Band-Band-Übergängen sind ein bimolekularer Prozess und somit proportional zur quadrierten Ladungsträgerdichte. Dies bewirkt einen nichtexponentiellen schnellen Zerfall bei hohen Ladungsträgerdichten, sowie einen langsameren Zerfall bei niedrigen Anregungsdichten, wie in Abbildung 5.3 (b) zu sehen ist. Die Abwesenheit einer schnellen Komponente bei geringen Ladungsträgerdichten zeugt von einer exzellenten Probenqualität, da das Einfangen in sättigbare nichtstrahlende Defekte, das gerade bei geringen Trägerdichten zu einem anfangs schnellen Abfall der PL-Intensität führt, nicht beobachtet wurde.

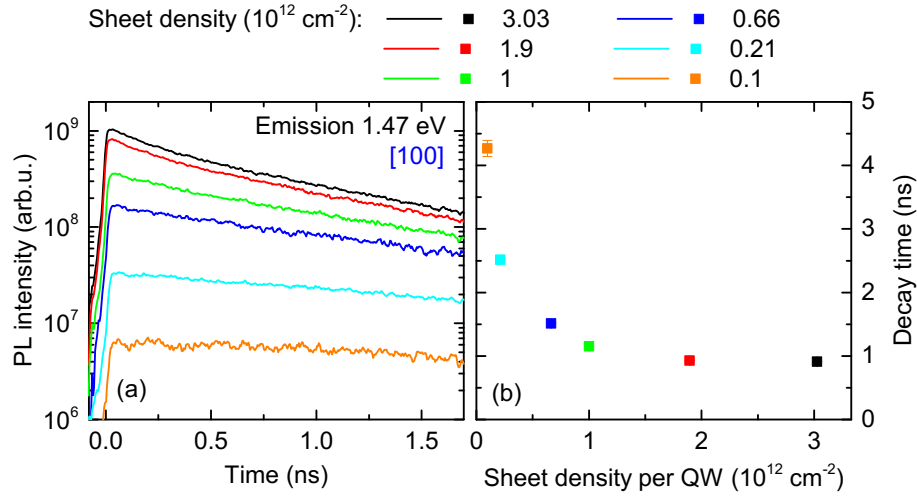


Abbildung 5.3.: (a) TRPL-Transienten der [100]-Probe bei verschiedenen Ladungsträgerdichten pro Quantenfilm und einer Anregungsenergie von  $E_{\text{exc}} = 1,61 \text{ eV}$ . (b)  $1/e$  Zerfallszeit der Transienten aus (a).

## 5.2. Ultraschnelle Dynamik zonengefalteter Phononen in GaAs-basierten Übergittern

### Experimentelle Ergebnisse der ultraschnellen Gitterdynamik

Im folgenden Abschnitt werden nun die phononischen Eigenschaften der beiden AlAs/GaAs-Übergitter präsentiert, die mit dem im Abschnitt 3.3.2 beschriebenen Anrege-Abfrage-Experiment in Reflexionsgeometrie untersucht wurden. Für die Durchführung wurde auf die *Fast Mode* – Methode zurückgegriffen.

Die Reflektivitätsänderung durch zonengefaltete Phononen wird dabei unter anderem durch eine Änderung der elektronischen Bandstruktur verursacht, die über das Deformationspotential mit der durch Phononen verursachten Verzerrung verknüpft ist. Unter der Annahme, dass die Reflektivität eher durch Änderungen des Brechungsindex  $n$  als des Extinktionskoeffizienten bestimmt wird, gilt für die Reflektivitätsänderung [80, 186]:

$$\Delta R = \frac{\partial R}{\partial E} \frac{\partial E}{\partial u} \Delta u, \quad (5.2)$$

wobei  $(\partial E / \partial u)$  die durch eine atomare Auslenkung  $u$  hervorgerufene Verschiebung der Bandlücke durch das Deformationspotential ist. Ein großer Anstieg des Reflektivitätsspektrums  $(\partial R / \partial E)$  begünstigt die Detektion von Gitterschwingungen. In Abbildung 5.4 (a) und (b) sind die Reflektivitätsspektren beider Proben als gestrichelte Linien sowie die spektrale Position des Impulses dargestellt. Die Photonenenergie der Anrege- und Abfrageimpulse wurde so gewählt, dass die Steigung im Spektrum möglichst steil

ist und somit eine energetische Verschiebung der Reflektivitätsspektren eine möglichst große Änderung der Reflektivität bewirkt. Wie bereits in der Voruntersuchung an der GaN-basierten MQW-Struktur erwähnt wurde, kann auch in der [111]-Probe eine phononinduzierte Verzerrung zusätzlich über den *quantum-confined Stark effect* detektiert werden, der zu einer Modifizierung der Absorptionskante führt [167,172].

In Abbildung 5.5 (a) ist die zeitlich aufgelöste Reflexionsänderung der Proben [100] und [111] bei einer Anregeimpulsenergie von 9,5 nJ aufgetragen. In beiden Proben steigt die Reflektivität innerhalb der Zeitauflösung des Experiments an. Der anschließende Zerfall der Reflexionsänderung ist eine Überlagerung von Beiträgen aus der GaAs-Deckschicht und dem dahinterliegenden Übergitter und wird durch mehrere Prozesse bestimmt.

Analog zur Diskussion im vorherigen Kapitel kann eine Reflexionsänderung auf einer Verringerung der Absorption aufgrund des Ausbleichens der Probe basieren. Dies führt zu einer Zunahme des Brechungsindex oberhalb der Bandlücke, siehe Abbildung 4.12 (c). Ein weiterer Mechanismus basiert auf einer Verringerung der Bandlückenenergie durch Bandlückenrenormierung, die eine Verschiebung der Reflektivitätsspektren und damit auch eine Reflektivitätsänderung bewirkt. Dieser Prozess hängt mit der zeitlichen Ladungsträgerkonzentration zusammen. In Abschnitt 5.1 wurde gezeigt, dass die gemessene Rekombination der Ladungsträger an der Oberfläche, d. h. in der Deckschicht und den ersten Quantenfilmen, schneller geschieht als die Rekombination der Ladungsträger in tieferen Quantenfilmen des Übergitters.

Da wegen unterschiedlicher Interbandübergänge in der GaAs-Deckschicht und in dem Übergitter auch die jeweiligen Reflexionsspektren spektral zueinander verschoben sind, können die durch den Anregeimpuls verursachten Reflexionsänderungen der jeweiligen Schichten gegeneinander wirken. Bei unterschiedlichem Vorzeichen des zeitlichen Verhaltens kann es zu einem Vorzeichenwechsel im Transienten kommen, siehe Transient der [100]-Probe in Abbildung 5.5 (a). In Abschnitt 5.1 wurde gezeigt, dass die Trägerkinetik in der GaAs-Deckschicht maßgeblich durch das Einfangen in Oberflächenzustände dominiert wird, was auf einer Zeitskala von ca. 20 ps geschieht. Möglicherweise spiegelt sich diese schnelle Reduktion der Ladungsträgerdichte in der GaAs-Deckschicht in dem schnellen Abfall der Reflektivitätsänderung in Abbildung 5.5 (a) wider.

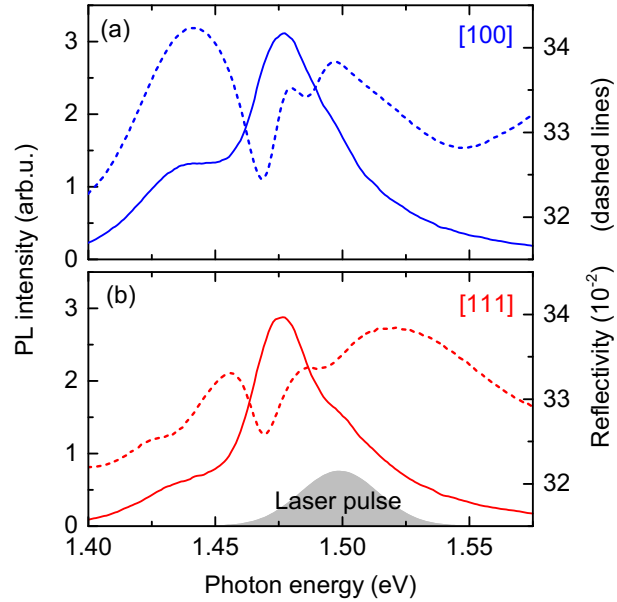


Abbildung 5.4.: PL-Spektrum (durchgezogene Linien) und Reflektivitätsspektrum (gestrichelte Linien) der [100]-Probe in (a) und der [111]-Probe in (b). Zusätzlich ist in Teilgrafik (b) das Spektrum der Anrege- und Abfragepulse eingezeichnet.

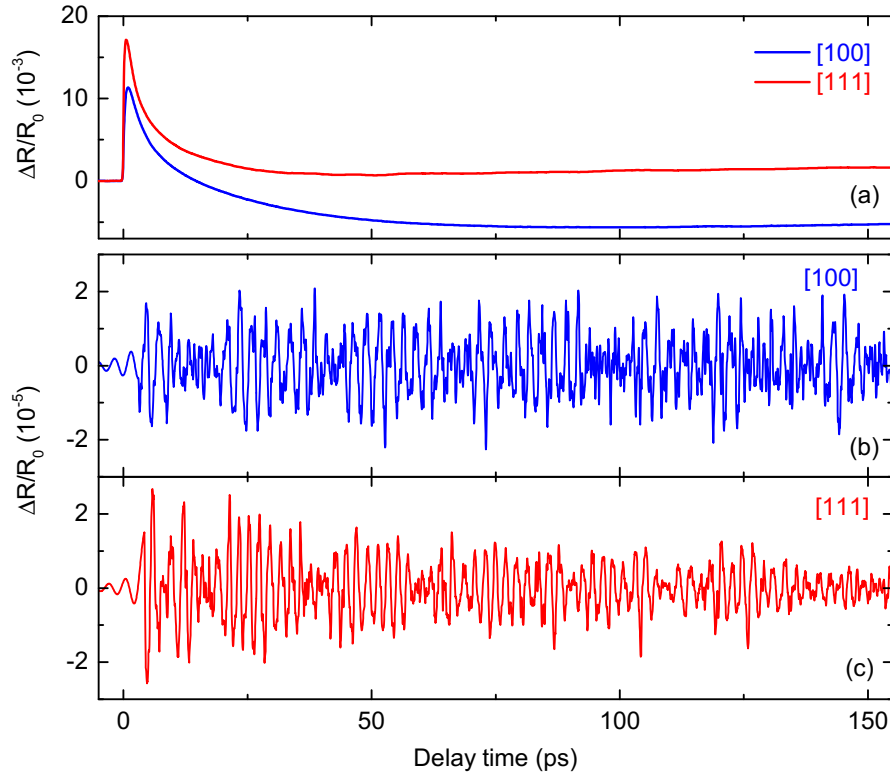


Abbildung 5.5.: (a) Transienten der Reflektivitätsänderung der [100]-Probe in rot und der [111]-Probe in blau, gemessen mit einer Impulsenergie von 9,5 nJ. Für die Reflektivitätsänderung gilt:  $\Delta R/R_0 = (R - R_0)/R_0$ , wobei  $R$  die Reflektivität mit und  $R_0$  die Reflektivität ohne Anregung ist. Kohärente zonengefaltete Phononen verursachen eine Modulation der Reflektivitätsänderung, die in (b) für die [100]-Probe und in (c) für die [111]-Probe dargestellt wird.

Die Photonenenergie des Anregimpulses von 1,5 eV ist energetisch knapp oberhalb des Interbandübergangs, sodass bei einer Eindringtiefe in der Größenordnung von  $1\ \mu\text{m}$  [181] Elektron-Loch-Paare über das gesamte Übergitter erzeugt werden. Entsprechend den Transienten in Abbildung 5.3 (a) kann die Ladungsträgerdichte im Übergitter innerhalb einer Zeitspanne von 150 ps als konstant angenommen werden.

Die transiente Reflektivitätsänderung, die durch die inkohärente Trägerkinetik hervorgerufen wird, wird von dem sehr viel schwächeren oszillierenden Signal überlagert, welches von kohärenten Phononen über die bereits beschriebenen Mechanismen verursacht wird. Zur Analyse der kohärenten Phononen wurde an die Transienten eine Fitfunktion angepasst, die aus drei exponentiellen Zerfällen besteht. Die Differenzwerte zwischen Fit und Messdaten werden mit einem Hochpassfilter mit einer Kantenfrequenz von 0,1 THz gefiltert, da das Augenmerk dieser Untersuchung auf zonengefalteten Phononen bei Frequenzen oberhalb von 0,1 THz liegt. Diese Differenzwerte sind in Abbildung 5.5 (b) für die [100]-Probe und in Abbildung 5.5 (c) für die [111]-Probe dargestellt. Die Analyse dieser Oszillationen mit einer Fouriertransformation ergibt die Spektren in Abbildung 5.6 (b) für die [100]-Probe und in (c) für die [111]-Probe. Beide Proben zeigen drei Peaks im Frequenzbereich zwischen 0,3 und 0,6 THz.

Durch den Vergleich dieser Fourierspektren mit der Dispersionsrelation der zonengefalteten Phononen in der jeweiligen Probe (Abb. 5.6 (a)) können den Frequenzen die entsprechenden Wellenvektoren zugeordnet werden. Die Berechnung der phononischen Bandstruktur ist in Abschnitt 2.2.2 erläutert. Die Schallgeschwindigkeit in GaAs in [111]-Richtung ist höher als in [100]-Richtung, was den Unterschied der Dispersionsrelationen der Phononen in beiden Proben erklärt. In beiden Proben werden die Moden  $P_{-1}$  und  $P_{+1}$  als gefaltete Phononen bei  $q = 2k_{\text{Licht}} = k_{\text{Licht}}^{\text{in}} + k_{\text{Licht}}^{\text{out}}$  identifiziert. Die Mode  $P_0$  weist einen  $k$ -Vektor von  $q = 0$  auf.

Da der Impulsübertrag der Moden  $P_{-1}$  und  $P_{+1}$  dem rückgestreuten Licht in Reflexionsgeometrie entspricht, kann diesen Oszillationen eine Anregung durch einen Raman-Prozess zugeordnet werden [80, 156, 158, 187, 188], wie er zu Beginn dieses Kapitels und in Abschnitt 2.4.3 erläutert wurde.

Im Gegensatz dazu werden die Oszillationen, die zur Mode  $P_0$  gehören, durch den bereits erwähnten Verrückungsmechanismus [163] und in der [111]-Probe zusätzlich über die piezoelektrische Elektron-Phonon-Wechselwirkung angeregt. Die intrinsischen piezoelektrischen Felder, die von wachstumsbedingten Verspannungen verursacht werden, fallen jedoch sehr gering aus, da der Unterschied der Gitterkonstanten von Quantenfilm- und Barrierenmaterial von  $a_{\text{GaAs}} = 5,6533 \text{ \AA}$  und  $a_{\text{AlAs}} = 5,6611 \text{ \AA}$  [29] mit 0,1 % sehr gering ist. Die Erzeugung kohärenter Phononen durch das impulsive Abschirmen intrinsischer piezoelektrischer Felder bewirkt folglich nur eine zu vernachlässigende Deformation.

Für eine weitere Analyse der kohärenten Phononen werden in Abbildung 5.6 (d) die zu der Raman-Mode  $P_{-1}$  gehörenden Oszillationen beider Proben dargestellt. Diese wurden über eine inverse Fouriertransformation mit einer Filterfunktion mit einer Halbwertsbreite von 45 GHz um die entsprechenden Peaks erhalten. Sowohl in der Amplitude als auch in ihrem zeitlichen Verhalten ist kein großer Unterschied zwischen den Oszillationen beider Proben erkennbar. Exponentielle Fits an die Amplituden ergeben ähnliche Zerfallszeiten für die [100]-Probe von 190 ps und für die [111]-Probe von 160 ps. Ein anderes Verhalten zeigen die Amplituden der Phononen  $P_0$ , die in Abbildung 5.6 (e) dargestellt sind. Während die  $P_0$  Oszillationen der [100]-Probe über einen Zeitbereich von 150 ps eine konstante Amplitude mit einer leichten Schwebung aufweisen, verringert sich die Amplitude kohärenter Phononen in der [111]-Probe mit einer Zerfallszeit von 40 ps signifikant schneller.

Dieses unterschiedliche Verhalten der beiden Proben soll nun näher untersucht werden, weshalb durch leistungsabhängige Messungen die zweidimensionale Ladungsträgerdichte pro Quantenfilm variiert wurde. Die spektrale Halbwertsbreite der Fourierkomponenten sind in der Grafik 5.7 (a) für die [100]-Probe und in (b) für die [111]-Probe dargestellt. Während die  $P_{-1}$  Oszillationen beider Proben, sowie der  $P_0$  Peak der [100]-Probe eine konstante Breite über den gesamten Dichtebereich aufweisen, nimmt die Breite der  $P_0$  Oszillation bei zunehmender Ladungsträgerkonzentration ab. Dies weist auf eine langsamere Abnahme der Amplitude der kohärenten Phononen bei höheren Trägerdichten, wie es die Einhüllenden in Abbildung 5.7 (c) zeigen. Diese überraschende Beobachtung ist gegensätzlich zu dem Verhalten kohärenter optischer Phononen in GaAs-Volumenmaterial, die bei höheren Anregungsdichten schneller abfallen [189, 190].

Zusätzlich ist bei zunehmender Anregungsdichte über den Messbereich eine leichte spektrale Verschiebung um 4 GHz zu geringeren Frequenzen zu beobachten. Da diese Verschiebung bei den Moden  $P_{-1}$  und  $P_0$  in beiden Proben gleichermaßen auftritt, liegt die Vermutung nahe, dass dieser Effekt auf die Erwärmung der Probe zurückzuführen ist. Der Elastizitätstensor  $C$  und die Dichte  $\rho$  und somit auch die Propagationsgeschwindigkeit

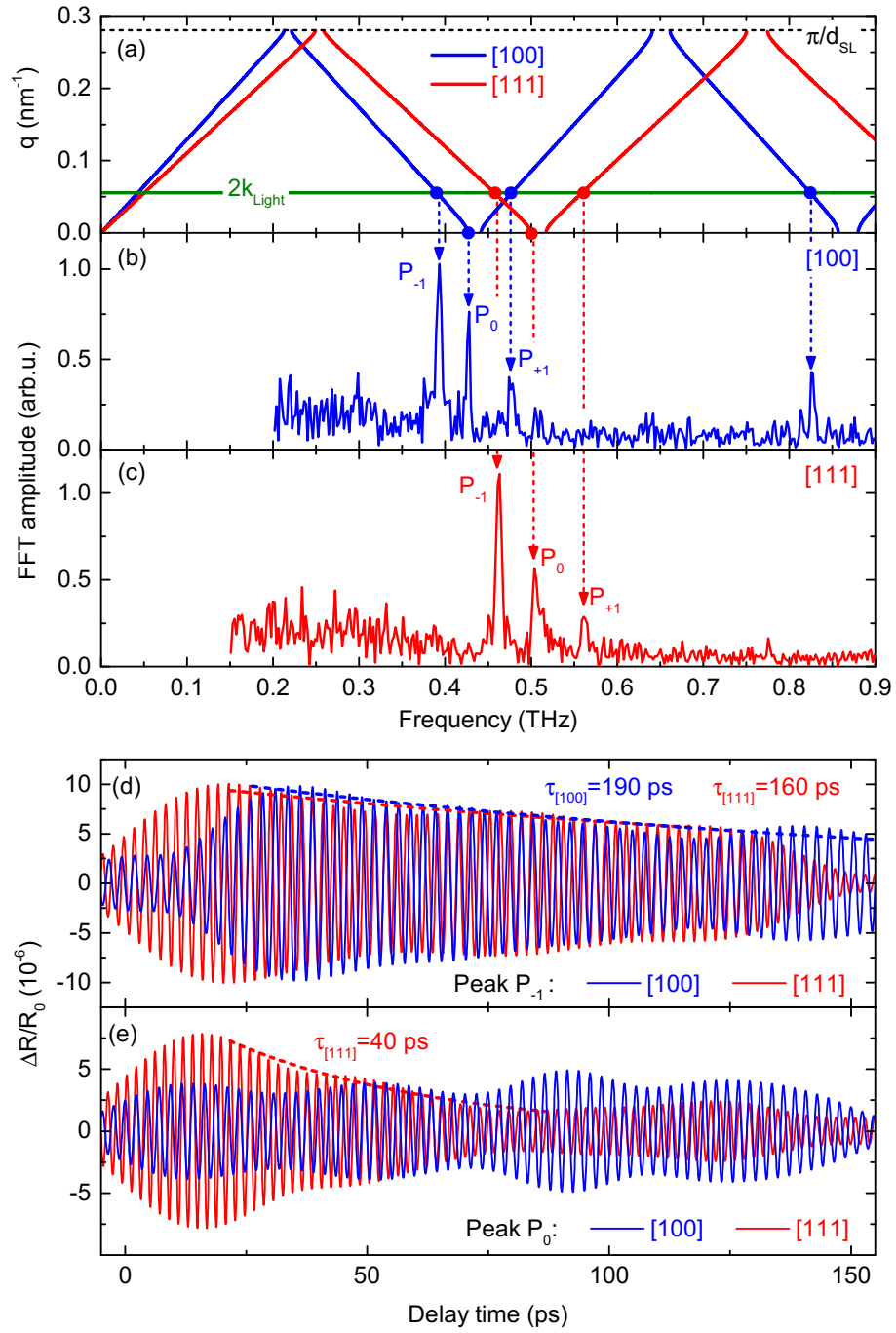


Abbildung 5.6.: (a) Dispersionsrelation der zonengefalteten Phononen entsprechend Formel (2.18) in Abschnitt 2.2.2, (b) Fourierspektrum der Oszillationen aus Abbildung 5.5 (b) und in (c) der Oszillationen aus Abbildung 5.5 (c). Inverse Fouriertransformation der  $P_{-1}$ -Mode beider Proben in (d) und der  $P_0$ -Mode beider Proben in (e).

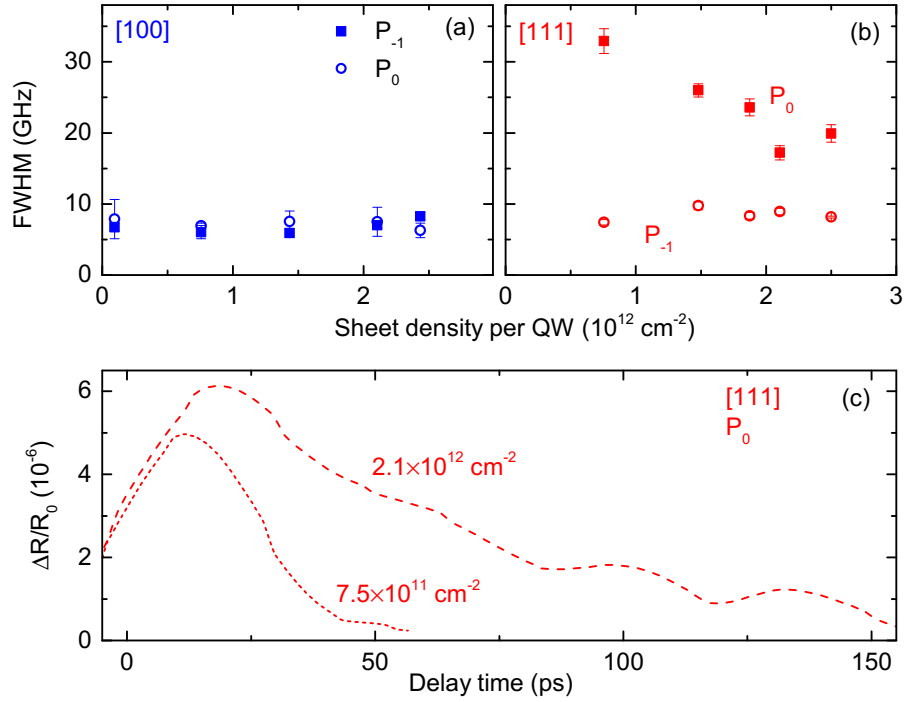


Abbildung 5.7.: Linienbreiten (FWHM) im Fourierspektrum der  $P_{-1}$ - und  $P_0$ -Moden der [100]-Probe in (a) und der [111]-Probe in (b) von leistungsabhängigen Messungen. (c) Einhüllende der Amplitude der  $P_0$  Oszillation in der [111]-Probe bei zwei verschiedenen Ladungsträgerdichten. Die Breite in (a) und (b) ist invers proportional zur Abklingzeit der Amplitude, d. h. geringere Ladungsträgerdichten führen zu einer schnelleren Abnahme der Amplitude, vgl. (c).

entsprechend Gleichung (2.13) und (2.14) sind temperaturabhängig [191]. Aus der Frequenzverschiebung der zonengefalteten Phononen ergibt sich eine Erwärmung der Probe um 70 K.

### Diskussion des Einflusses der piezoelektrischen Eigenschaften

Der Fokus dieses Abschnitts liegt auf der Diskussion des unerwarteten Verhaltens der Mode  $P_0$  in der [111]-Probe, nämlich der signifikant größeren Linienbreite sowie der Abnahme der Linienbreite bei steigender Ladungsträgerdichte. Entsprechend der Gleichung (2.16) und (2.17) müssen für akustische Wellen an jeder Grenzschicht von GaAs und AlAs sowohl die atomare Auslenkung als auch die Verspannung übereinstimmen. Die atomare Auslenkung für einen fixen Zeitpunkt ist in der Grafik 5.8 (a) für die  $P_0$ -Mode in rot und für die  $P_{-1}$ -Mode in grün dargestellt. Die resultierende Deformation longitudinaler akustischer Phononen in der [111]-Probe bewirkt entsprechend der Gleichung (2.6) eine piezoelektrische Polarisierung, welche sich parallel zur Propagationsrichtung und somit in Wachstumsrichtung ausbildet. Wie in Abschnitt 2.1.2 erläutert, ist diese Polarisierung proportional zur Deformation, die an den Grenzschichten aufgrund von unterschiedlichen Elastizitätskoeffizienten in GaAs und AlAs unstetig ist.

Zusätzlich unterscheiden sich die piezoelektrischen Koeffizienten für GaAs und AlAs,

was die Unstetigkeit der von der Deformation hervorgerufenen elektrischen Polarisation zusätzlich verstärkt. In Grafik 5.8 (b) ist das von der Verspannung in (a) verursachte piezoelektrische Feld dargestellt. Die Mode  $P_0$  hat einen Wellenvektor von  $q = 0$  und somit die gleiche Periodizität wie das Übergitter, was zu identischen Feldverläufen in jeder Übergitterperiode führt. Durch die Sprünge des elektrischen Felds an jeder Grenzschicht gleichen sich die Polarisationsbeiträge in positiver und negativer  $z$ -Richtung nicht aus, sodass die Mittelung des piezoelektrischen Feldes über eine Übergitterperiode nur zu bestimmten Zeiten gleich Null ist. Die rote Kurve in Abbildung 5.8 (c) zeigt das resultierende Feld pro Übergitterperiode entlang der Wachstumsrichtung. Dieses oszilliert mit der Frequenz der  $P_0$ -Mode, d. h. mit 510 GHz. Bei der  $P_{-1}$ -Mode führt der Unterschied zwischen der Wellenlänge der kohärenten Phononen und der Übergitterperiodizität zu einer räumlichen Variation des über die jeweilige Übergitterperiode gemittelten Felds. Diese räumliche Variation entlang der Wachstumsrichtung ist als grüne Linie in Abbildung 5.8 (c) dargestellt und oszilliert mit der Frequenz der  $P_{-1}$ -Mode, d. h. mit 460 GHz.

Das piezoelektrische Feld kann Ladungsträger beschleunigen, die sich aufgrund der geringen Barrierendicke über mehrere Quantenfilme bewegen können. Stöße und Reibung hemmen die Elektronenbewegung, was sich wiederum auf die elektrische Polarisation und über den inversen piezoelektrischen Effekt auf die Phononen auswirkt. Dieser Effekt ist gerade für die  $P_0$ -Mode relevant, da sich dort ein makroskopisches elektrisches Feld über das gesamte Übergitter ausbildet. Das von der  $P_{-1}$ -Mode verursachte piezoelektrische Feld erstreckt sich über ca. sechs Perioden, was noch innerhalb der Kohärenzlänge der Elektronen liegt [192] und somit dieser Dämpfungsmechanismus nicht auf Phononen der  $P_{-1}$ -Mode wirkt. Aus Symmetriegründen bildet sich bei einer Deformation in Richtung [100] kein piezoelektrisches Feld aus, weshalb in der [100]-Probe keine Dämpfung über die piezoelektrische Elektron-Phonon-Wechselwirkung existiert. In allen Proben hingegen wirkt die Elektron-Phonon-Kopplung über das Deformationspotential.

Zonengefaltete Phononen mit einem Wellenvektor von  $q \neq 0$  propagieren durch den Kristall [179, 193], was ebenfalls zu einer zeitlichen Variation führt. Die räumliche Variation des piezoelektrischen Felds der  $P_{-1}$ -Mode in Abbildung 5.8 (c) überspannt ca. zehn Übergitterperioden. Bei einer Propagationsgeschwindigkeit von 5450 m/s in [111]-Richtung, was der Gruppengeschwindigkeit ( $\partial\omega/\partial k$ ) im elastischen Kontinuumsmodell bei einem Wellenvektor von  $q = 2k_{\text{Light}}$  in Abbildung 5.6 (a) entspricht, dauert die Propagation durch eine räumliche Periode von zehn Übergitterperioden 25 ps. Dies entspricht etwa dem Zehnfachen der Periodendauer der kohärenten Phononen mit einer Frequenz von 460 GHz. Folglich ist die Variation des piezoelektrischen Felds, welches durch die kohärente Phononen verursacht wird, sehr viel schneller als die Variation verursacht durch deren Propagation.

Eine Amplitudenreduktion aufgrund der Propagation der  $P_{-1}$ -Mode durch das Übergitter geschieht auf einer Zeitskala von 150 ps und ist damit eindeutig langsamer als der Zerfall der  $P_0$ -Mode in der [111]-Probe.

Die zweite Beobachtung in Abbildung 5.7 (b) ist die Abnahme der Linienbreite der  $P_0$ -Mode in der [111]-Probe bei einer zunehmenden Ladungsträgerkonzentration, was auf eine langsamere Abnahme der Amplitude kohärenter Phononen hindeutet, vgl. Einhüllende in Abbildung 5.7 (c). Diese Zunahme der Lebensdauer kohärenter Phononen kann auf der Abschirmung der piezoelektrischen Felder durch photogenerierte Ladungsträger basieren, sodass der zusätzliche Dämpfungsmechanismus über die piezoelektrische Elektron-Phonon-



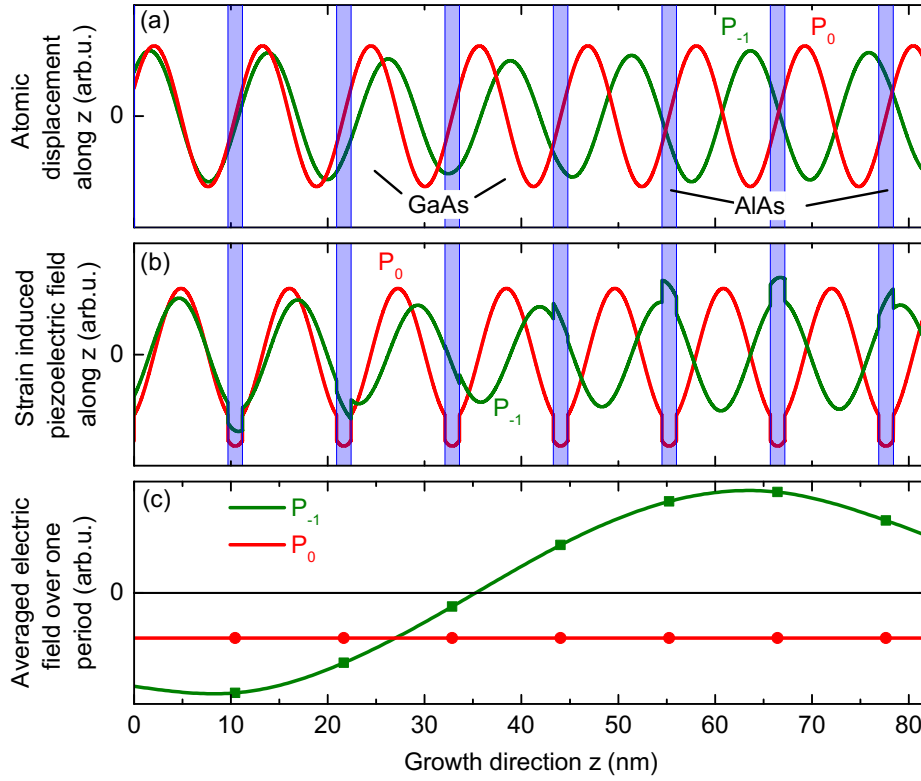


Abbildung 5.8.: (a) Atomare Auslenkung der Moden  $P_{-1}$  (grün) und  $P_0$  (rot) in der  $[111]$ -Probe zu einem fixen Zeitpunkt. (b) Von der jeweiligen Mode in (a) verursachtes piezoelektrisches Feld. (c) Über eine Periode gemittelttes piezoelektrisches Feld aus (b). Da der räumliche Verlauf des piezoelektrischen Feldes der  $P_0$ -Mode in jeder Periode identisch ist, kann sich ein makroskopisches Feld aufbauen, das mit der Frequenz der  $P_0$ -Mode oszilliert.

Wechselwirkung unterdrückt wird.

Für die Abschirmlänge  $\lambda_{\text{TF}}$  des piezoelektrischen Feldes durch Ladungsträger gilt entsprechend des Thomas-Fermi-Ansatzes [194, 195] für einen zweidimensionalen Fall [196]:

$$\lambda_{\text{TF}} = \left( \frac{e^2}{2\varepsilon_0\varepsilon_r} \left( \frac{\partial n}{\partial \mu} \right)_{\mu=E_F} \right)^{-1} = \left( \frac{e^2}{2\varepsilon_0\varepsilon_r} \frac{m^*}{\pi\hbar^2} \left( 1 - \frac{1}{\exp(\frac{\mu}{k_B T}) - 1} \right) \right)^{-1}. \quad (5.3)$$

Die partielle Ableitung  $(\partial n / \partial \mu)$  bezieht sich auf die zweidimensionale Ladungsträgerdichte  $n$  aus Gleichung (2.31). In Abbildung 5.9 (a) ist diese Thomas-Fermi Abschirmlänge über den gemessenen Ladungsträgerbereich aufgetragen. Ab einer Trägerdichte von  $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  liegt die Abschirmlänge innerhalb einer Übergitterperiode und verringert den Einfluss der piezoelektrischen Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Dies spiegelt sich in der abnehmenden Linienbreite der  $P_0$ -Mode in Abbildung 5.7 (b) wider.

Da die Photonenenergie der Anregungsimpulse spektral nahe an der Bandlücke des Übergitters ist, kann nur eine begrenzte Anzahl verfügbarer Zustände durch photogenerierte Elektronen besetzt werden. Zur Klärung der Fragestellung, ob eine Ladungsträgerdichte von  $2,5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  in diesem Aufbau erreicht werden kann, ist in Abbildung 5.9 (b) das chemische Potential für einen zweidimensionalen Fall (siehe Gleichung 2.31) aufgetragen.

chung (2.32)) über den untersuchten Bereich der Ladungsträgerdichte für eine Ladungsträgertemperatur von  $T = 300$  K dargestellt. Ab einer Ladungsträgerdichte von  $5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  ist der Halbleiter entartet. Da die Photonenenergie des Anregeimpulses ca. 30 meV über dem Interbandübergang liegt, müsste bereits bei einer Ladungsträgerdichte von ca.  $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  das Ausbleichen der Probe eintreten [197, 198]. Jedoch führt die durch die Frequenzverschiebung der Phononen ermittelte Gittertemperaturerhöhung von 70 K zu einer Bandlückenverringern von 32 meV [199] und die Bandlückenrenormierung bei einer Ladungsträgerdichte von  $2 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  pro QW zu einer Verringerung von 40 meV [200, 201]. Beide Effekte verschieben das Einsetzen des Ausbleichens zu höheren Ladungsträgerdichten, die bei einer Überschussenergie der Photonen von 100 meV bei  $2,5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  liegt. Zusätzlich hat die Temperatur gerade bei höheren Trägerdichten einen zu vernachlässigenden Einfluss auf das chemische Potential. Folglich ist bei der höchsten angenommenen Ladungsträgerdichte von  $2,5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  ein Ausbleichen der Probe noch nicht eingetreten und höhere Anregungsdichten können immer noch eine Reduzierung der Abschirmlänge bewirken. Auch Messungen zonengefalteter Phononen in piezoelektrischen Materialien über Raman-Streuung haben eine Verbreiterung der Linien bei geringen Ladungsträgerdichten gezeigt, was einem Abschirmen piezoelektrischer Felder bei hohen Ladungsträgerdichten zugerechnet wurde [188].

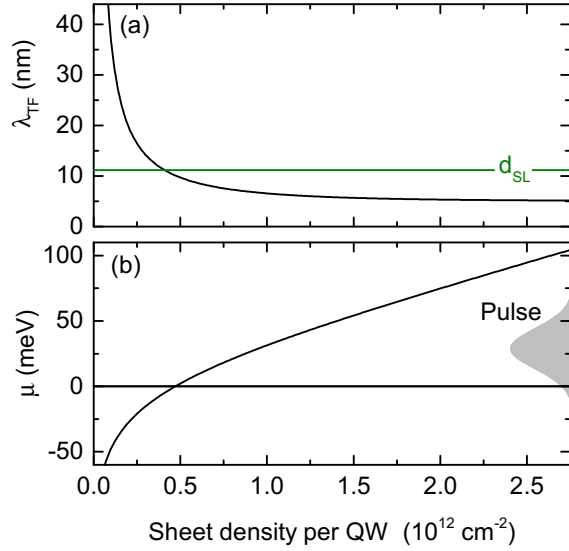


Abbildung 5.9.: (a) Thomas-Fermi Abschirmlänge eines 2D-Falls. (b) Chemisches Potential entsprechend Gleichung (2.32) mit Pulsspektrum der Anrege- und Abfrageimpulse.

Des Weiteren kann sowohl die Gittererwärmung als auch die Bandlückenrenormierung zu einer Verschiebung des Reflexionsspektrums und somit auch zu einer Reflexionsänderung führen, was die gemessene Amplitude der Oszillationen kohärenter Phononen beeinflussen kann. Jedoch sind beide Effekte langsam gegenüber der Zerfallszeit der Amplitude kohärenter Phononen, weshalb sie auf das transiente Verhalten der Amplituden keinen Einfluss haben sollten.

Die leistungsabhängigen Messungen ermöglichen nun eine Quantifizierung der Dämpfung über die piezoelektrische Elektron-Phonon-Wechselwirkung. So weist die Mode  $P_{-1}$  in der [111]-Probe eine spektrale Linienbreite von  $\Delta f = 7$  GHz (FWHM) auf (Abb. 5.7 (b)), was auch sehr stark den spektralen Breiten der  $P_0$ - und  $P_{-1}$ -Mode in der [100]-Probe ähnelt (Abb. 5.7 (a)). Bei einer vorherrschenden homogenen Linienverbreiterung haben diese Moden eine Dephasierungszeit von  $T_2^0 = 46$  ps. Die  $P_0$ -Mode der [111]-Probe hat bei einer Ladungsträgerdichte von  $7,5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  eine spektrale Breite von  $\Delta f = 32$  GHz,

was einer Abklingzeit von  $T_2 = 9,9$  ps entspricht. Anhand der reziproken Subtraktion

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_2^0} \quad (5.4)$$

kann nun dem zusätzlichen Dämpfungsmechanismus über die piezoelektrische Wechselwirkung eine Zeitkonstante von  $\tau \approx 13$  ps zugeordnet werden.

Zusätzlich kann eine Dephasierung aufgrund von zusätzlichen Phononenzuständen in der phononischen Bandlücke, die durch die endliche Ausdehnung des Übergitters entstehen, ausgeschlossen werden, da dieser Beitrag in beiden Proben gleichermaßen zum Tragen kommen müsste.



---

## Zusammenfassung

---

Diese Dissertation behandelt die Dynamik der elektronischen und phononischen Elementaranregungen in Übergittern. Sie unterteilt sich in zwei Teilgebiete. Das erste umfasst eine Untersuchung der Ladungsträgerkinetik in einem aluminiumhaltigen GaN-basierten Übergitter auf der Femto- bis Nanosekundenskala mittels zeitaufgelöster Photolumineszenz (TRPL) und mittels Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Der zweite Teil behandelt den Einfluss der piezoelektrischen Elektron-Phonon-Wechselwirkung auf kohärente Phononen in Übergittern, die mittels Anrege-Abfrage-Spektroskopie untersucht wurden.

Die Ergebnisse der Photolumineszenz (PL)-Spektroskopie zur Untersuchung der Ladungsträgerdynamik in einem AlGaIn/GaN-Übergitter auf einer Zeitskala von wenigen Pikosekunden bis 2 ns lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- Die PL-Emission des Übergitters besteht aus zwei Komponenten. Die höherenergetische Komponente kann dem Interbandübergang des Übergitters zugeordnet werden, die niederenergetische stammt aus einer GaN-Pufferschicht hinter dem Übergitter. Letztere wird hauptsächlich durch Reabsorption der PL-Emission des Übergitters angeregt.
- TRPL-Messungen zeigen für den Interbandübergang des Übergitters Zerfallszeiten zwischen 120 ps und 300 ps. Bei geringen Anregungsdichten herrscht ein nichtexponentielles Verhalten vor, dessen schnellere Zerfallskomponente maßgeblich durch den Einfang photogenerierter Ladungsträger in sättigbare Defekte verursacht wird.
- Bei tiefen Temperaturen dominiert die strahlende Rekombination gebundener Exzitonen. Eine Rotverschiebung der Emission wurde beobachtet und der Bindung der Exzitonen an Potentialminima aufgrund von Aluminiumfluktuationen zugeschrieben. Dies äußert sich auch in einem Gradienten in der spektral aufgelösten Zerfallszeit, der aufgrund von Umverteilung längere Zerfallszeiten bei geringeren Emissionsenergien aufzeigt.
- TRPL-Messungen dienten auch der Untersuchung des Einflusses einer Siliziumnitrid-Beschichtung auf die Langzeitstabilität. So führt die Passivierung zu einem stabilen Verhalten bei hohen Anregungsdichten, jedoch wird durch die Passivierung die Defektdichte erhöht, was sich in einem schnelleren Zerfall der Photolumineszenz äußert.

Zur Untersuchung der ultraschnellen Ladungsträgerdynamik wurde auf die spektral aufgelöste Anrege-Abfrage-Spektroskopie in Reflexionsgeometrie zurückgegriffen. Diese ermöglicht die spektrale Zuordnung einzelner Relaxationsprozesse nahe der Bandkante des Übergitters. Hierbei ließen sich drei Haupteffekte identifizieren:

- Das Einfangen der Elektronen in Zustände wenige meV unterhalb des Interbandübergangs geschieht auf einer Zeitskala von 150 – 200 fs. Aufgrund der hohen effektiven Masse der Elektronen in GaN-basierten Heterostrukturen sorgen Aluminiumatome in den Barrieren für eine lokale Variation der Energieeigenwerte, was selbst bei einer statistisch gleichförmigen Verteilung der Aluminiumatome in den Barrieren in einem Ausschmieren der Zustandsdichte resultiert. Die spektrale Zuordnung des Einfangprozesses zu Zuständen knapp unterhalb des Interbandübergangs legt eine Herkunft der zusätzlichen Zustände aus dieser Unordnung der Aluminiumatome in den Barrieren nahe.
- Das Kühlen der Ladungsträger durch Phononemission erstreckt sich bei Raumtemperatur auf einen Zeitraum von 2 ps. Dies ist signifikant länger als berechnete Werte, was einer Reabsorption von heißen Phononen zugerechnet wird, die den Kühlprozess verlangsamen. Bei tiefen Temperaturen geschieht der Kühlprozess, ermittelt aus der hochenergetischen Flanke der PL-Spektren bei TRPL-Messungen, auf einer Zeitskala von 35 ps.
- Auch mittels Anrege-Abfrage-Spektroskopie wurde eine Auffüllkinetik weiterer Defekte in der Bandlücke auf einer Zeitskala von 10 ps beobachtet. Dies kann ein Einfangmechanismus bewirken, der sich auch in der schnellen Komponente des nichtexponentiellen PL-Zerfalls in TRPL-Messungen widerspiegelt.

Die künstliche Periodizität in Übergittern sorgt auch für die Ausbildung einer phononischen Minibandstruktur. Dadurch entstehen zusätzliche phononische Zustände nahe des Zentrums der Brillouin-Zone, die durch die Wechselwirkung mit Licht angeregt werden können. Für die Untersuchung des Einflusses der piezoelektrischen Eigenschaften von GaN auf Ladungsträger wurde auf zwei GaAs-basierte Proben zurückgegriffen, die jeweils in [100]- und in [111]-Richtung gewachsen wurden. Eine phononinduzierte longitudinale Verspannung in der [111]-Probe bewirkt ein piezoelektrisches Feld, an welches Ladungsträger zusätzlich koppeln können, während die Wechselwirkung in der [100]-Probe ausschließlich über das Deformationspotential geschieht. Zuerst wurde die Rekombinationskinetik mittels TRPL-Spektroskopie und anschließend die kohärente Dynamik der zonengefalteten Phononen mittels entarteter Anrege-Abfrage-Spektroskopie untersucht. Die Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- TRPL-Untersuchungen mit einer Anregung bei 3,1 eV haben zwei Linien bei 1,43 eV und 1,48 eV gezeigt, wobei die erste der Band-Band-Rekombination in einer GaAs-Deckschicht und die zweite dem Interbandübergang im Übergitter zugeordnet werden kann. Der nichtexponentielle Zerfall in beiden Linien wird von einem schnellen Einfangen der Ladungsträger in Oberflächenzustände dominiert. Die TRPL-Emission bei Anregungsphotonen von 1,61 eV entstammt aufgrund der größeren Eindringtiefe hauptsächlich der Rekombination im Übergitter und zeigt Zerfallszeiten zwischen 1 ns und 4 ns. Gleichzeitig verringert sich der relative Einfluss der Oberflächenzustände auf den schnellen Einfangprozess photogenerierter Ladungsträger, was nun zu einem monoexponentiellen Zerfall der PL-Intensität führt.

- Die ultraschnelle Spektroskopie zeigt in beiden Übergittern drei Moden zonengefalteter Phononen, wobei zwei Raman-artige Moden ( $P_{-1}, P_{+1}$ ) mit einem Wellenvektor von  $q = 2k_{\text{Licht}}$  und eine Mode ( $P_0$ ) mit einem Wellenvektor von  $q = 0$  identifiziert wurden. Die  $P_0$ -Mode der [111] Probe unterscheidet sich von der  $P_0$ -Mode in der [100] Probe und den  $P_{-1}$ -Moden in beiden Proben:
  - Die zonengefalteten Phononen bei  $q = 0$  erzeugen ein makroskopisches elektrisches Feld, an das das Elektron-Loch-Plasma koppeln kann. Der elektrische Widerstand des resultierenden Stroms dämpft die kohärenten Phononen und führt somit zu einer Abnahme der Phononamplitude.
  - Eine Erhöhung der Ladungsträgerdichte schirmt piezoelektrische Felder ab, so dass der zusätzliche Dämpfungsmechanismus über die piezoelektrische Wechselwirkung unterdrückt wird.

Ein zentraler Punkt dieser Untersuchung war die Frage, ob piezoelektrische Effekte eine Verbesserung der Effizienz einer Ultraschallquelle über das Prinzip des SASERs bringen kann. Hierbei führte zum einen die piezoelektrischen Eigenschaften zu einer Vergrößerung der Elektron-Phonon-Kopplung, was einen Vorteil bei der Verstärkung kohärenter Phononen darstellt. Zum anderen wurde jedoch gezeigt, dass zonengefaltete Phononen im Zentrum der Brillouin-Zone durch die piezoelektrische Wechselwirkung sehr stark gedämpft werden. Die Frage nach einer potentiellen Effizienzverbesserung kann somit nicht abschließend beantwortet werden.





## A.1. Abschätzung der Reflektivitätsänderung

Die Reflektivität des passivierten AlGaIn/GaN-Übergitters kann anhand der Fresnelschen Formeln und senkrechter Polarisierung berechnet werden. Der Berechnung liegen folgende Parameter zugrunde: Einfallswinkel  $\Theta = 8^\circ$ , Wellenlänge:  $\lambda = 350$  nm, Brechungsindex GaN:  $n_{\text{GaN}} = 2.7$  [136], Brechungsindex Siliziumnitrid (SiN):  $n_{\text{SiN}} = 2$  [145].

Für den Reflexionsfaktor  $r_{\text{SiN}}$  an der Grenzschicht Luft-SiN gilt:

$$r_{\text{SiN}} = \frac{\sin(\Theta - \Theta_{\text{SiN}})}{\sin(\Theta + \Theta_{\text{SiN}})}, \quad \text{mit} \quad \Theta_{\text{SiN}} = \arcsin\left(\frac{\sin(\Theta)}{n_{\text{SiN}}}\right). \quad (\text{A.1})$$

Für den Reflexionsfaktor  $r_{\text{GaN}}$  an der Grenzschicht SiN-GaN gilt:

$$r_{\text{GaN}} = \frac{\sin(\Theta_{\text{SiN}} - \Theta_{\text{GaN}})}{\sin(\Theta_{\text{SiN}} + \Theta_{\text{GaN}})}, \quad \text{mit} \quad \Theta_{\text{GaN}} = \arcsin\left(\frac{\sin(\Theta_{\text{SiN}})}{n_{\text{GaN}}/n_{\text{SiN}}}\right). \quad (\text{A.2})$$

Für den zusammengesetzten Reflexionsfaktor ergibt sich dann:

$$r = r_{\text{SiN}} + r_{\text{GaN}} \cdot \exp(i 2\pi D/\lambda), \quad \text{mit} \quad D = \frac{2 d_{\text{SiN}} n_{\text{SiN}}}{\cos(\Theta_{\text{SiN}})}. \quad (\text{A.3})$$

Daraus resultiert eine Reflektivität  $R_0$  der Intensität von:

$$R_0 = |r|^2 = 0.034 \quad (\text{A.4})$$

Es werden nun zwei Fallunterscheidungen vorgenommen:

- Berechnung der Änderung der Reflektivität, wenn sich der Realteil des Brechungsindex von GaN um  $\delta = 10^{-3}$  erhöht:

$$\frac{R_\delta - R_0}{R_0} = -1,952 \cdot 10^{-3} \quad (\text{A.5})$$

- Berechnung der Änderung der Reflektivität, wenn sich der Imaginärteil des Brechungsindex von GaN um  $\delta = i \cdot 10^{-3}$  erhöht:

$$\frac{R_\delta - R_0}{R_0} = 2,77 \cdot 10^{-5} \quad (\text{A.6})$$

Folglich wird eine Reflektivitätsänderung hauptsächlich durch eine Änderung des Realteils bewirkt.



- [1] H. Welker, “Über neue halbleitende Verbindungen,” *Zeitschrift für Naturforschung* **7**, 744–749 (1952).
- [2] H. Welker, “Über neue halbleitende Verbindungen II,” *Zeitschrift für Naturforschung* **8**, 248–251 (1953).
- [3] E. F. Schubert, *Light-Emitting Diodes* (Cambridge University Press, Cambridge, New York, Melbourne, 2008).
- [4] M. Pilkuhn, H. Rupprecht, and J. Woodall, “Continuous Stimulated Emission from GaAs Diodes at 77° K,” *Proceedings of the IEEE* **51**, 1242 (1963).
- [5] J. I. Pankove and M. J. Massoulie, “Injection Luminescence in Gallium Arsenide,” *Journal of the Electrochemical Society* **109**, C67 (1962).
- [6] J. I. Pankove and J. E. Berkeyheiser, “Light Source Modulated at Microwave Frequencies,” *Proceedings of the Institute of Radio Engineers* **50**, 1976 (1962).
- [7] R. N. Hall, R. O. Carlson, T. J. Soltys, G. E. Fenner, and J. D. Kingsley, “Coherent Light Emission from GaAs Junctions,” *Physical Review Letters* **9**, 366 (1962).
- [8] M. I. Nathan, W. P. Dumke, G. Burns, F. H. Dill, and G. Lasher, “Stimulated Emission of Radiation from GaAs p-n Junctions,” *Applied Physics Letters* **1**, 62 (1962).
- [9] J. I. Pankove, E. A. Miller, D. Richman, and J. E. Berkeyheiser, “Electroluminescence in GaN,” *Journal of Luminescence* **4**, 63–66 (1971).
- [10] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, “Candela-class high-brightness InGaN/AlGaIn double-heterostructure blue-light-emitting diodes,” *Applied Physics Letters* **64**, 1687–1689 (1994).
- [11] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, “High-brightness InGaIn/AlGaIn double-heterostructure blue-green-light-emitting diodes,” *Journal of Applied Physics* **76**, 8189–8191 (1994).
- [12] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, “InGaIn multi-quantum-well-structure laser diodes with cleaved mirror cavity facets,” *Japanese Journal of Applied Physics* **35**, L217–L220 (1996).
- [13] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, Y. Sugimoto, and H. Kiyoku, “Optical gain and carrier lifetime of InGaIn multi-quantum well structure laser diodes,” *Applied Physics Letters* **69**, 1568–1570 (1996).

- [14] L. Esaki and R. Tsu, “Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors,” IBM Journal of Research and Development **14**, 61 (1970).
- [15] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, “Quantum Cascade Laser,” Science **264**, 553–556 (1994).
- [16] B. F. Levine, C. G. Bethea, K. K. Choi, J. Walker, and R. J. Malik, “Bound-to-extended state absorption GaAs superlattice transport infrared detectors,” Journal of Applied Physics **64**, 1591–1593 (1988).
- [17] A. Kastalsky, T. Duffield, S. J. Allen, and J. Harbison, “Photovoltaic Detection of Infrared Light in a GaAs/AlGaAs Superlattice,” Applied Physics Letters **52**, 1320–1322 (1988).
- [18] Y. S. Liu, A. Haq, T. T. Kao, K. Mehta, S. C. Shen, T. Detchprohm, P. D. Yoder, R. D. Dupuis, H. G. Xie, and F. A. Ponce, “Electrically conducting  $n$ -type AlGaN/GaN distributed Bragg reflectors grown by metalorganic chemical vapor deposition,” Journal of Crystal Growth **443**, 81–84 (2016).
- [19] A. V. Akimov, C. L. Poyser, and A. J. Kent, “Review of microwave electrophonics in semiconductor nanostructures,” Semiconductor Science and Technology **32**, 053003 (2017).
- [20] M. Woerner and T. Elsaesser, “Ultrafast nonequilibrium dynamics of intersubband excitations in quasi-two-dimensional semiconductors,” in “Ultrafast Phenomena in Semiconductors,” , K.-T. Tsen, ed. (Springer, New York, Berlin, Heidelberg, 2001), pp. 93–159.
- [21] J. Shah, *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures* (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1996).
- [22] R. A. Oliver, S. E. Bennett, T. Zhu, D. J. Beesley, M. J. Kappers, D. W. Saxey, A. Cerezo, and C. J. Humphreys, “Microstructural origins of localization in InGaN quantum wells,” Journal of Physics D-Applied Physics **43**, 354003 (2010).
- [23] M. A. Reshchikov and H. Morkoç, “Luminescence properties of defects in GaN,” Journal of Physics D – Applied Physics **97**, 061301 (2005).
- [24] F. Schubert, U. Merkel, T. Mikolajick, and S. Schmult, “Influence of substrate quality on structural properties of AlGaN/GaN superlattices grown by molecular beam epitaxy,” Journal of Applied Physics **115**, 083511 (2014).
- [25] R. Hentschel, J. Gärtner, A. Wachowiak, A. Grosser, T. Mikolajick, and S. Schmult, “Surface morphology of AlGaN/GaN heterostructures grown on bulk GaN by MBE,” Journal of Crystal Growth **500**, 1–4 (2018).
- [26] R. Gross and A. Marx, *Festkörperphysik* (De Gruyter, Berlin, Boston, 2014), 2nd ed.
- [27] O. Ambacher, B. Foutz, J. Smart, J. R. Shealy, N. G. Weimann, K. Chu, M. Murphy, A. J. Sierakowski, W. J. Schaff, L. F. Eastman, R. Dimitrov, A. Mitchell, and

- M. Stutzmann, “Two dimensional electron gases induced by spontaneous and piezoelectric polarization in undoped and doped AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> heterostructures,” *Journal of Applied Physics* **87**, 334–344 (2000).
- [28] S. Haussühl, *Physical properties of crystals* (Wiley-VCH, Weinheim, 2007).
- [29] S. Adachi, “GaAs, AlAs, and Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As - Material parameters for use in research and device applications,” *Journal of Applied Physics* **58**, R1–R29 (1985).
- [30] P. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties* (Springer, Heidelberg, Dordrecht, London, New York, 2010).
- [31] N. Nakamura, H. Ogi, and M. Hirao, “Elastic, anelastic, and piezoelectric coefficients of GaN,” *Journal of Applied Physics* **111**, 013509 (2012).
- [32] M. Catti, Y. Noel, and R. Dovesi, “Full piezoelectric tensors of wurtzite and zinc blende ZnO and ZnS by first-principles calculations,” *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **64**, 2183–2190 (2003).
- [33] C. Kolm, S. A. Kulin, and B. L. Averbach, “Studies on Group III-V Intermetallic Compounds,” *Physical Review* **108**, 965–971 (1957).
- [34] M. Leszczynski, H. Teisseyre, T. Suski, I. Grzegory, M. Bockowski, J. Jun, S. Porowski, K. Pakula, J. M. Baranowski, C. T. Foxon, and T. S. Cheng, “Lattice parameters of gallium nitride,” *Applied Physics Letters* **69**, 73–75 (1996).
- [35] T. B. Bateman, H. J. McSkimin, and J. M. Whelan, “Elastic Moduli of Single-Crystal Gallium Arsenide,” *Journal of Applied Physics* **30**, 544–545 (1959).
- [36] I. Vurgaftman and J. R. Meyer, “Band parameters for nitrogen-containing semiconductors,” *Journal of Applied Physics* **94**, 3675–3696 (2003).
- [37] G. Arlt and P. Quadflieg, “Piezoelectricity in III-V Compounds with a Phenomenological Analysis of the Piezoelectric Effect,” *Physica Status Solidi* **25**, 323–330 (1968).
- [38] O. Madelung, *Semiconductors Group IV Elements and III-V Compounds* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1991).
- [39] H. Morkoç, *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices; Volume 1: Materials Properties, Physics and Growth* (Wiley-VCH, Weinheim, 2008).
- [40] C. Patel, T. J. Parker, H. Jamshidi, and W. F. Sherman, “Phonon Frequencies in GaAs,” *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **122**, 461–467 (1984).
- [41] V. Bougrov, M. E. Levinshtein, S. L. Rumyantsev, and A. Zubrilov, *Properties of advanced semiconductor materials GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe* (John Wiley and Sons, Inc., New York, 2001), 2nd ed.
- [42] J. S. Blakemore, “Semiconducting and other major properties of gallium-arsenide,” *Journal of Applied Physics* **53**, R123–R181 (1982).

- [43] T. Ruf, J. Serrano, M. Cardona, P. Pavone, M. Pabst, M. Krisch, M. D'Astuto, T. Suski, I. Grzegory, and M. Leszczynski, "Phonon Dispersion Curves in Wurtzite-Structure GaN Determined by Inelastic X-Ray Scattering," *Physical Review Letters* **86**, 906–909 (2001).
- [44] S. M. Rytov, "Acoustical properties of a thinly laminated medium," *Akust. Zh.* **2** (1956).
- [45] B. Jusserand and M. Cardona, "Raman spectroscopy of vibrations in superlattices," in "Topics in Applied Physics: Light Scattering in Solids V," , M. Cardona and G. Güntherodt, eds. (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1989), pp. 49–67.
- [46] J. H. Neave, P. J. Dobson, J. J. Harris, P. Dawson, and B. A. Joyce, "Silicon doping of MBE-grown GaAs films," *Applied Physics A – Materials Science & Processing* **32**, 195–200 (1983).
- [47] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, "Si-doped and Ge-doped GaN films grown with GaN buffer layers," *Japanese Journal of Applied Physics Part 1 – Regular Papers Short Notes & Review Papers* **31**, 2883–2888 (1992).
- [48] A. H. Wilson, "The theory of electronic semi-conductors," *Proceedings of the Royal Society of London Series A – Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **133**, 458–491 (1931).
- [49] C. Klingshirn, *Semiconductor Optics* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2007).
- [50] J. R. Chelikowsky and M. L. Cohen, "Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors," *Physical Review B* **14**, 556–582 (1976).
- [51] Y. C. Yeo, T. C. Chong, and M. F. Li, "Electronic band structures and effective-mass parameters of wurtzite GaN and InN," *Journal of Applied Physics* **83**, 1429–1436 (1998).
- [52] H. Yamashita, K. Fukui, S. Misawa, and S. Yoshida, "Optical properties of AlN epitaxial thin-films in the vacuum ultraviolet region," *Journal of Applied Physics* **50**, 896–898 (1979).
- [53] E. Sakalauskas, O. Tuna, A. Kraus, H. Bremers, U. Rossow, C. Giesen, M. Heuken, A. Hangleiter, G. Gobsch, and R. Goldhahn, "Dielectric function and bowing parameters of InGaN alloys," *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **249**, 485–488 (2012).
- [54] F. Yun, M. A. Reshchikov, L. He, T. King, H. Morkoç, S. W. Novak, and L. C. Wei, "Energy band bowing parameter in  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  alloys," *Journal of Applied Physics* **92**, 4837–4839 (2002).
- [55] H. C. Casey and M. B. Panish, *Heterostructure lasers, Part A: Fundamental principles* (Academic Press, New York, San Francisco, London, 1978).

- [56] H. Morkoç, *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices; Volume 2: Electronic and Optical Processes in Nitrides* (Wiley-VCH, Weinheim, 2008).
- [57] H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, P. Dawson, K. J. Moore, and C. T. Foxon, “Order of the X conduction-band valleys in type-II GaAs/AlAs quantum wells,” *Physical Review B* **39**, 13426–13433 (1989).
- [58] M. Holtz, R. Cingolani, K. Reimann, R. Muralidharan, K. Syassen, and K. Ploog, “Electronic structure of GaAs/AlAs symmetric superlattices - A high-pressure study near the type-I-type-II crossover,” *Physical Review B* **41**, 3641–3646 (1990).
- [59] G. Bastard, “Superlattice band structure in the envelope-function approximation,” *Physical Review B* **24**, 5693–5697 (1981).
- [60] C. Weisbuch and B. Vinter, *Quantum Semiconductor Structures* (Academic Press, San Diego, London, 1991).
- [61] R. D. Kronig and W. G. Penney, “Quantum mechanics of electrons on crystal lattices,” *Proceedings of the Royal Society of London Series A – Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* **130**, 499–513 (1931).
- [62] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures* (Les Editions de Physique, John Wiley and Sons, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 1988), pp. 18–22, Monographies de Physique.
- [63] M. W. Prairie and R. M. Kolbas, “A general derivation of the density of states function for quantum-wells and superlattices,” *Superlattices and Microstructures* **7**, 269–277 (1990).
- [64] M. Dresselhaus, G. Dresselhaus, S. B. Cronin, and A. G. Souza Filho, *Solid State Properties* (Springer, Berlin, 2018).
- [65] J. Bardeen and W. Shockley, “Deformation potentials and mobilities in non-polar crystals,” *Physical Review* **80**, 72–80 (1950).
- [66] H. Fröhlich, “Electrons in lattice fields,” *Advances in Physics* **3**, 325 (1954).
- [67] H. Morkoç, *Handbook of Nitride Semiconductors and Devices; Volume 3: GaN-based Optical and Electronic Devices* (Wiley-VCH, Weinheim, 2008).
- [68] P. G. Klemens, “Anharmonic Decay of Optical Phonons,” *Physical Review* **148**, 845 (1966).
- [69] B. K. Ridley, “The LO phonon lifetime in GaN,” *Journal of Physics – Condensed Matter* **8**, L511–L513 (1996).
- [70] F. Vallee and F. Bogani, “Coherent time-resolved investigation of LO-phonon dynamics in GaAs,” *Physical Review B* **43**, 12049–12052 (1991).
- [71] F. Vallee, “Time-resolved investigation of coherent LO-phonon relaxation in III-V semiconductors,” *Physical Review B* **49**, 2460–2468 (1994).

- [72] M. A. Strosio and M. Dutta, *Phonons in nanostructures* (Cambridge University Press, Cambridge, 2001).
- [73] J. Shah, “Hot electrons and phonons under high intensity photoexcitation of semiconductors,” *Solid-State Electronics* **21**, 43–50 (1978).
- [74] P. Bigenwald, P. Christol, L. Konczewicz, P. Testud, and B. Gil, “III-V nitrides: wurtzite symmetry and optical absorption,” *Materials Science and Engineering B – Solid State Materials for Advanced Technology* **50**, 208–211 (1997).
- [75] R. C. Miller and D. A. Kleinman, “Excitons in GaAs Quantum Wells,” *Journal of Luminescence* **30**, 520–540 (1985).
- [76] Y. Fu and K. A. Chao, “Exciton binding energy in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As multiple quantum wells,” *Physical Review B* **43**, 12626–12629 (1991).
- [77] I. Pelant and J. Valenta, *Luminescence Spectroscopy of Semiconductors* (Oxford University Press, Oxford, New York, 2012).
- [78] J. Jimenez and J. W. Tomm, *Spectroscopic Analysis of Optoelectronic Semiconductors* (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2016).
- [79] M. Grundmann, *The Physics of Semiconductors* (Springer, Cham, Heidelberg, New York, 2006).
- [80] A. Bartels, T. Dekorsy, H. Kurz, and K. Köhler, “Coherent Zone-Folded Longitudinal Acoustic Phonons in Semiconductor Superlattices: Excitation and Detection,” *Physical Review Letters* **82**, 1044–1047 (1999).
- [81] P. Capper, S. Irvine, and T. Joyce, “Epitaxial Crystal Growth: Methods and Materials,” in “Springer Handbook of Electronic and Photonic Materials,” , S. Kasap and P. Capper, eds. (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2017), pp. 309–341.
- [82] S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode* (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1997).
- [83] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, and R. Van Overstraeten, “III-nitrides: Growth, characterization, and properties,” *Journal of Applied Physics* **87**, 965–1006 (2000).
- [84] Advanced Research Systems, Inc., *Manual: Closed Cycle Cryogenic Refrigerator* (2009).
- [85] Hamamatsu Photonics K.K., *Manual: Streak Camera C5680* (2006).
- [86] M. A. Würtele, T. Kolbe, M. Lipsz, A. Külberg, M. Weyers, M. Kneissl, and M. Jekel, “Application of GaN-based ultraviolet-C light emitting diodes - UV LEDs - for water disinfection,” *Water Research* **45**, 1481–1489 (2011).
- [87] J. Hodgkinson and R. P. Tatam, “Optical gas sensing: a review,” *Measurement Science and Technology* **24**, 59 (2013).



- [88] K. C. Anyaogu, A. A. Ermoshkin, D. C. Neckers, A. Mejiritski, O. Grinevich, and A. V. Fedorov, “Performance of the light emitting diodes versus conventional light sources in the UV light cured formulations,” *Journal of Applied Polymer Science* **105**, 803–808 (2007).
- [89] L. Kemeny, Z. Csoma, E. Bagdi, A. H. Banham, L. Krenacs, and A. Koreck, “Targeted phototherapy of plaque-type psoriasis using ultraviolet B-light-emitting diodes,” *British Journal of Dermatology* **163**, 167–173 (2010).
- [90] M. Guttman, F. Mehnke, B. Belde, F. Wolf, C. Reich, L. Sulmoni, T. Wernicke, and M. Kneissl, “Optical light polarization and light extraction efficiency of AlGaIn-based LEDs emitting between 264 and 220 nm,” *Japanese Journal of Applied Physics* **58**, SCCB20 (2019).
- [91] M. Kneissl and J. Rass, *III-Nitride Ultraviolet Emitters* (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2016).
- [92] Y. Nagasawa and A. Hirano, “A Review of AlGaIn-Based Deep-Ultraviolet Light-Emitting Diodes on Sapphire,” *Applied Sciences* **8**, 1264 (2018).
- [93] M. Kneissl, T. Y. Seong, J. Han, and H. Amano, “The emergence and prospects of deep-ultraviolet light-emitting diode technologies,” *Nature Photonics* **13**, 233–244 (2019).
- [94] S. W. Kaun, P. G. Burke, M. H. Wong, E. C. H. Kyle, U. K. Mishra, and J. S. Speck, “Effect of dislocations on electron mobility in AlGaIn/GaN and AlGaIn/AlN/GaN heterostructures,” *Applied Physics Letters* **101**, 262102 (2012).
- [95] X. H. Wu, P. Fini, E. J. Tarsa, B. Heying, S. Keller, U. K. Mishra, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, “Dislocation generation in GaN heteroepitaxy,” *Journal of Crystal Growth* **189**, 231–243 (1998).
- [96] A. Pinos, V. Liuolia, S. Marcinkevicius, J. Yang, R. Gaska, and M. S. Shur, “Localization potentials in AlGaIn epitaxial films studied by scanning near-field optical spectroscopy,” *Journal of Applied Physics* **109**, 113516 (2011).
- [97] C.-K. Sun, Y.-L. Huang, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, “Ultrafast electron dynamics study of GaN,” *Physical Review B* **59**, 13535–13538 (1999).
- [98] C. K. Sun, J. C. Liang, X. Y. Yu, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, “Studies of carrier dynamics in unintentionally doped gallium nitride bandtail states,” *Applied Physics Letters* **78**, 2724–2726 (2001).
- [99] C. K. Choi, Y. H. Kwon, J. S. Krasinski, G. H. Park, G. Setlur, J. J. Song, and Y. C. Chang, “Ultrafast carrier dynamics in a highly excited GaN epilayer,” *Physical Review B* **63**, 115315 (2001).
- [100] Y. C. Huang, G. W. Chern, K. H. Lin, J. C. Liang, C. K. Sun, C. C. Hsu, S. Keller, and S. P. DenBaars, “Femtosecond dynamics of exciton bleaching in bulk GaN at room temperature,” *Applied Physics Letters* **81**, 85–87 (2002).

- [101] H. Ye, G. W. Wicks, and P. M. Fauchet, “Hot electron relaxation time in GaN,” *Applied Physics Letters* **74**, 711–713 (1999).
- [102] H. Ye, G. W. Wicks, and P. M. Fauchet, “Electron and hole dynamics in GaN,” *Materials Science and Engineering B* **82**, 131–133 (2001).
- [103] U. Özgür and H. O. Everitt, “Ultrafast carrier relaxation in GaN,  $\text{In}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{N}$ , and an  $\text{In}_{0.07}\text{Ga}_{0.93}\text{N}/\text{In}_{0.12}\text{Ga}_{0.88}\text{N}$  multiple quantum well,” *Physical Review B* **67**, 155308 (2003).
- [104] M. Feneberg, S. Osterburg, K. Lange, C. Lidig, B. Garke, R. Goldhahn, E. Richter, C. Netzel, M. D. Neumann, N. Esser, S. Fritze, H. Witte, J. Blaesing, A. Dadgar, and A. Krost, “Band gap renormalization and Burstein-Moss effect in silicon- and germanium-doped wurtzite GaN up to  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ ,” *Physical Review B* **90**, 075203 (2014).
- [105] M. Bouzidi, Z. Benzarti, I. Halidou, S. Soltani, Z. Chine, and B. EL Jani, “Photoreflectance investigation of band gap renormalization and the Burstein-Moss effect in Si doped GaN grown by MOVPE,” *Materials Science in Semiconductor Processing* **42**, 273–276 (2015).
- [106] M. Suzuki and T. Uenoyama, “Strain effect on electronic and optical properties of GaN/AlGaIn quantum-well lasers,” *Journal of Applied Physics* **80**, 6868–6874 (1996).
- [107] N. Grandjean, B. Damilano, S. Dalmaso, M. Leroux, M. Laugt, and J. Massies, “Built-in electric-field effects in wurtzite AlGaIn/GaN quantum wells,” *Journal of Applied Physics* **86**, 3714–3720 (1999).
- [108] H. M. Ng, R. Harel, S. N. G. Chu, and A. Y. Cho, “The effect of built-in electric field in GaN/AlGaIn quantum wells with high AlN mole fraction,” *Journal of Electronic Materials* **30**, 134–137 (2001).
- [109] V. Y. Davydov, Y. E. Kitaev, I. N. Goncharuk, A. N. Smirnov, J. Graul, O. Semchinova, D. Uffmann, M. B. Smirnov, A. P. Mirgorodsky, and R. A. Evarestov, “Phonon dispersion and Raman scattering in hexagonal GaN and AlN,” *Physical Review B* **58**, 12899–12907 (1998).
- [110] J. A. Davidson, P. Dawson, T. Wang, T. Sugahara, J. W. Orton, and S. Sakai, “Photoluminescence studies of InGaIn/GaN multi-quantum wells,” *Semiconductor Science and Technology* **15**, 497–505 (2000).
- [111] P. P. Paskov, P. O. Holtz, B. Monemar, S. Kamiyama, M. Iwaya, H. Amano, and I. Akasaki, “Phonon-assisted photoluminescence in InGaIn/GaN multiple quantum wells,” *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **234**, 755–758 (2002).
- [112] C. Netzel, V. Hoffmann, J. Tömm, F. Mahler, S. Einfeldt, and M. Weyers, “Temperature-Dependent Charge Carrier Diffusion in  $[000\bar{1}]$  Direction of GaN Determined by Luminescence Evaluation of Buried InGaIn Quantum Wells,” *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **257**, 2000016 (2020).

- [113] H. S. Kim, R. A. Mair, J. Li, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, “Time-resolved photoluminescence studies of  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  alloys,” *Applied Physics Letters* **76**, 1252–1254 (2000).
- [114] T. Onuma, S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Sota, P. Cantu, T. M. Katona, J. F. Keating, S. Keller, U. K. Mishra, S. Nakamura, and S. P. DenBaars, “Radiative and nonradiative processes in strain-free  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  films studied by time-resolved photoluminescence and positron annihilation techniques,” *Journal of Applied Physics* **95**, 2495–2504 (2004).
- [115] T. Saxena, S. Nargelas, J. Mickevicius, O. Kravcov, G. Tamulaitis, M. Shur, M. Shatalov, J. Yang, and R. Gaska, “Spectral dependence of carrier lifetime in high aluminum content AlGaIn epitaxial layers,” *Journal of Applied Physics* **118**, 085705 (2015).
- [116] T. Saxena, M. Shur, S. Nargelas, Z. Podlipskas, R. Aleksiejunas, G. Tamulaitis, M. Shatalov, J. W. Yang, and R. Gaska, “Dynamics of nonequilibrium carrier decay in AlGaIn epitaxial layers with high aluminum content,” *Optics Express* **23**, 19646–19655 (2015).
- [117] J. Mickevicius, M. S. Shur, R. S. Q. Fareed, J. P. Zhang, R. Gaska, and G. Tamulaitis, “Time-resolved experimental study of carrier lifetime in GaN epilayers,” *Applied Physics Letters* **87**, 241918 (2005).
- [118] J. Mickevicius, G. Tamulaitis, E. Kuokstis, K. Liu, M. S. Shur, J. P. Zhang, and R. Gaska, “Well-width-dependent carrier lifetime in AlGaIn/AlGaIn quantum wells,” *Applied Physics Letters* **90**, 131907 (2007).
- [119] T. Schmidt, K. Lischka, and W. Zulehner, “Excitation-power dependence of the near-band-edge photoluminescence of semiconductors,” *Physical Review B* **45**, 8989–8994 (1992).
- [120] O. Brandt, H. Yang, and K. H. Ploog, “Impact of recombination centers on the spontaneous emission of semiconductors under steady-state and transient conditions,” *Physical Review B* **54**, R5215 (1996).
- [121] J. S. Im, A. Moritz, F. Steuber, V. Harle, F. Scholz, and A. Hangleiter, “Radiative carrier lifetime, momentum matrix element, and hole effective mass in GaN,” *Applied Physics Letters* **70**, 631–633 (1997).
- [122] S. Marcinkevicius, K. M. Kelchner, L. Y. Kuritzky, S. Nakamura, S. P. DenBaars, and J. S. Speck, “Photoexcited carrier recombination in wide m-plane InGaIn/GaN quantum wells,” *Applied Physics Letters* **103**, 111107 (2013).
- [123] O. Brandt, J. Ringling, K. H. Ploog, H. J. Wunsche, and F. Henneberger, “Temperature dependence of the radiative lifetime in GaN,” *Physical Review B* **58**, 15977–15980 (1998).
- [124] G. D. Chen, M. Smith, J. Y. Lin, H. X. Jiang, S. H. Wei, M. A. Khan, and C. J. Sun, “Fundamental optical transitions in GaN,” *Applied Physics Letters* **68**, 2784–2786 (1996).

- [125] Y. P. Varshni, “Temperature dependence of the energy gap in semiconductors,” *Physica* **34**, 149 (1967).
- [126] S. W. Feng, Y. C. Cheng, Y. Y. Chung, C. C. Yang, Y. S. Lin, C. Hsu, K. J. Ma, and J. I. Chyi, “Impact of localized states on the recombination dynamics in InGaN/GaN quantum well structures,” *Journal of Applied Physics* **92**, 4441–4448 (2002).
- [127] T. Langer, H. G. Pietscher, F. A. Ketzner, H. Jonen, H. Bremers, U. Rossow, D. Menzel, and A. Hangleiter, “S shape in polar GaInN/GaN quantum wells: piezoelectric-field-induced blue shift driven by onset of nonradiative recombination,” *Physical Review B* **90**, 205302 (2014).
- [128] Y. H. Cho, G. H. Gainer, A. J. Fischer, J. J. Song, S. Keller, U. K. Mishra, and S. P. DenBaars, “S-shaped temperature-dependent emission shift and carrier dynamics in InGaN/GaN multiple quantum wells,” *Applied Physics Letters* **73**, 1370–1372 (1998).
- [129] F. Feix, T. Flissikowski, C. Cheze, R. Calarco, H. T. Grahn, and O. Brandt, “Individual electron and hole localization in submonolayer InN quantum sheets embedded in GaN,” *Applied Physics Letters* **109**, 042104 (2016).
- [130] A. Bell, S. Srinivasan, C. Plumlee, H. Omiya, F. A. Ponce, J. Christen, S. Tanaka, A. Fujioka, and Y. Nakagawa, “Exciton freeze-out and thermally activated relaxation at local potential fluctuations in thick  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  layers,” *Journal of Applied Physics* **95**, 4670–4674 (2004).
- [131] K. B. Lee, P. J. Parbrook, T. Wang, F. Ranalli, T. Martin, R. S. Balmer, and D. J. Wallis, “Optical investigation of exciton localization in  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ ,” *Journal of Applied Physics* **101**, 053513 (2007).
- [132] Y. H. Cho, G. H. Gainer, J. B. Lam, J. J. Song, W. Yang, and W. Jhe, “Dynamics of anomalous optical transitions in  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$  alloys,” *Physical Review B* **61**, 7203–7206 (2000).
- [133] N. Nepal, J. Li, M. L. Nakarmi, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, “Exciton localization in AlGaIn alloys,” *Applied Physics Letters* **88**, 062103 (2006).
- [134] M. Oueslati, C. Benoit, and M. Zouaghi, “Resonant Raman-scattering on localized states due to disorder in  $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$  Alloys,” *Physical Review B* **37**, 3037–3041 (1988).
- [135] C. Gourdon and P. Lavallard, “Exciton transfer between localized states in  $\text{CdS}_{1-x}\text{Se}_x$  alloys,” *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **153**, 641–652 (1989).
- [136] J. F. Muth, J. D. Brown, M. A. L. Johnson, Z. H. Yu, R. M. Kolbas, J. W. Cook, and J. F. Schetzina, “Absorption coefficient and refractive index of GaN, AlN and AlGaIn alloys,” *MRS Internet Journal of Nitride Semiconductor Research* **4S1**, G5.2 (1999).

- [137] C. Harder, “Pump diode lasers,” in “Optical Fiber Telecommunications V A Components and subsystems,” , I. P. Kaminov, T. Li, and A. E. Willner, eds. (Elsevier, Amsterdam, 2008), pp. 107–117.
- [138] J. W. Tamm, M. Ziegler, M. Hempel, and T. Elsaesser, “Mechanisms and fast kinetics of the catastrophic optical damage (COD) in GaAs-based diode lasers,” *Laser & Photonics Reviews* **5**, 422–441 (2011).
- [139] C. Netzel, J. Jeschke, F. Brunner, A. Knauer, and M. Weyers, “Temperature and doping dependent changes in surface recombination during UV illumination of (Al)GaN bulk layers,” *Journal of Applied Physics* **120**, 095307 (2016).
- [140] C. Netzel, J. Jeschke, A. Knauer, and M. Weyers, “Avoidance of instable photoluminescence intensity from AlGaIn bulk layers,” *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **254**, 1600672 (2017).
- [141] S. A. Chevtchenko, M. A. Reshchikov, Q. Fan, X. Ni, Y. T. Moon, A. A. Baski, and H. Morkoç, “Study of SiN<sub>x</sub> and SiO<sub>2</sub> passivation of GaN surfaces,” *Journal of Applied Physics* **101**, 113709 (2007).
- [142] K. F. Berggren and B. E. Sernelius, “Band-gap narrowing in heavily doped many-valley semiconductors,” *Physical Review B* **24**, 1971–1986 (1981).
- [143] P. von Allmen, “Plasmaron excitation and band renormalization in a 2-dimensional electron-gas,” *Physical Review B* **46**, 13345–13350 (1992).
- [144] Y. H. Lee, A. Chavez-Pirson, S. W. Koch, H. M. Gibbs, S. H. Park, J. Morhange, A. Jeffery, N. Peyghambarian, L. Banyai, A. C. Gossard, and W. Wiegmann, “Room-temperature optical nonlinearities in GaAs,” *Physical Review Letters* **57**, 2446–2449 (1986).
- [145] F. Reizman and W. Van Gelder, “Optical Thickness Measurement of SiO<sub>2</sub>-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> Films on Silicon,” *Solid-State Electronics* **10**, 625–632 (1967).
- [146] H. Wang and A. B. Chen, “Calculation of shallow donor levels in GaN,” *Journal of Applied Physics* **87**, 7859–7863 (2000).
- [147] Private Diskussion mit Dr. Michael Woerner.
- [148] J. F. Young, T. Gong, P. M. Fauchet, and P. J. Kelly, “Carrier-carrier scattering rates within nonequilibrium optically injected semiconductor plasmas,” *Physical Review B* **50**, 2208–2215 (1994).
- [149] S. Hughes and T. Kobayashi, “Ultrafast carrier-carrier scattering in wide-gap GaN semiconductor laser devices,” *Semiconductor Science and Technology* **12**, 733–736 (1997).
- [150] N. M. Stanton, A. J. Kent, A. V. Akimov, P. Hawker, T. S. Cheng, and C. T. Foxon, “Energy relaxation by hot electrons in *n*-GaN epilayers,” *Journal of Applied Physics* **89**, 973–979 (2001).

- [151] S. Das Sarma, *Quantum Many-Body Aspects of Hot-Carrier Relaxation in Semiconductor Microstructures* (Academic Press, Inc., Boston, San Diego, New York, 1992), chap. 2, pp. 53–86.
- [152] P. Lugli, P. Bordone, L. Reggiani, M. Rieger, P. Kocevar, and S. M. Goodnick, “Monte Carlo studies of nonequilibrium phonon effects in polar semiconductors and quantum wells. I. Laser Photoexcitation,” *Physical Review B* **39**, 7852–7865 (1989).
- [153] C.-K. Sun, F. Vallee, S. Keller, J. E. Bowers, and S. P. DenBaars, “Femtosecond studies of carrier dynamics in InGaN,” *Applied Physics Letters* **70**, 2004–2006 (1997).
- [154] K. T. Tsen, D. K. Ferry, A. Botchkarev, B. Sverdlov, A. Salvador, and H. Morkoç, “Time-resolved Raman studies of the decay of the longitudinal optical phonons in wurtzite GaN,” *Applied Physics Letters* **72**, 2132–2134 (1998).
- [155] K. Wang, J. Simon, N. Goel, and D. Jena, “Optical study of hot electron transport in GaN: Signatures of the hot-phonon effect,” *Applied Physics Letters* **88**, 022103 (2006).
- [156] C. Colvard, R. Merlin, M. V. Klein, and A. C. Gossard, “Observation of Folded Acoustic Phonons in a Semiconductor Superlattice,” *Physical Review Letters* **45**, 298–301 (1980).
- [157] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fischer, H. Morkoç, and A. C. Gossard, “Folded acoustic and quantized optic phonons in (GaAl)As superlattices,” *Physical Review B* **31**, 2080–2091 (1985).
- [158] B. Jusserand, D. Paquet, F. Molloy, F. Alexandre, and G. Leroux, “Influence of the supercell structure on the folded acoustical Raman line intensities in superlattices,” *Physical Review B* **35**, 2808–2817 (1987).
- [159] A. Yamamoto, T. Mishina, Y. Masumoto, and M. Nakayama, “Coherent oscillation of zone-folded phonon modes in GaAs-AlAs superlattices,” *Physical Review Letters* **73**, 740–743 (1994).
- [160] R. Merlin, “Generating Coherent THz Phonons with Light Pulses,” *Solid State Communications* **102**, 207–220 (1997).
- [161] A. V. Kuznetsov and C. J. Stanton, “Theory of Coherent Phonon Oscillations in Semiconductors,” *Physical Review Letters* **73**, 3243 (1994).
- [162] H. J. Zeiger, J. Vidal, T. K. Cheng, E. P. Ippen, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, “Theory for displacive excitation of coherent phonons,” *Physical Review B* **45**, 768–778 (1992).
- [163] M. Bargheer, N. Zhavoronkov, Y. Gritsai, J. C. Woo, D. S. Kim, M. Woerner, and T. Elsaesser, “Coherent Atomic Motions in a Nanostructure Studied by Femtosecond X-ray Diffraction,” *Science* **306**, 1771–1773 (2004).
- [164] M. Bargheer, N. Zhavoronkov, J. C. Woo, D. S. Kim, M. Woerner, and T. Elsaesser, “Excitation mechanisms of coherent phonons unravelled by femtosecond X-ray

- diffraction,” *Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics* **243**, 2389–2396 (2006).
- [165] U. Özgür, C.-W. Lee, and H. O. Everitt, “Control of Coherent Acoustic Phonons in Semiconductor Quantum Wells,” *Physical Review Letters* **86**, 5604–5607 (2001).
  - [166] C.-K. Sun, J.-C. Liang, C. J. Stanton, A. Abare, L. Coldren, and S. P. DenBaars, “Large coherent acoustic-phonon oscillation observed in InGaN/GaN multiple-quantum wells,” *Applied Physics Letters* **75**, 1249–1251 (1999).
  - [167] C.-K. Sun, J.-C. Liang, and X.-Y. Yu, “Coherent Acoustic Phonon Oscillations in Semiconductor Multiple Quantum Wells with Piezoelectric Fields,” *Physical Review Letters* **84**, 179–182 (2000).
  - [168] E. Makarona, B. Daly, J. S. Im, H. Maris, A. Nurmikko, and J. Han, “Coherent generation of 100 GHz acoustic phonons by dynamic screening of piezoelectric fields in AlGaIn/GaN multilayers,” *Applied Physics Letters* **81**, 2791–2793 (2002).
  - [169] C.-Y. Chen, Y.-C. Wen, H.-P. Chen, T.-M. Liu, C.-C. Pan, J.-I. Chyi, and C.-K. Sun, “Narrow-band detection of propagating coherent acoustic phonons in piezoelectric InGaIn/GaN multiple-quantum wells,” *Applied Physics Letters* **91**, 133101 (2007).
  - [170] C. E. Martinez, N. M. Stanton, P. M. Walker, A. J. Kent, S. V. Novikov, and C. T. Foxon, “Generation of terahertz monochromatic acoustic phonon pulses by femtosecond optical excitation of a gallium nitride/aluminium nitride superlattice,” *Applied Physics Letters* **86**, 221915 (2005).
  - [171] D. M. Moss, A. V. Akimov, A. J. Kent, B. A. Glavin, M. J. Kappers, J. L. Hollander, M. A. Moram, and C. J. Humphreys, “Coherent terahertz acoustic vibrations in polar and semipolar gallium nitride-based superlattices,” *Applied Physics Letters* **94**, 011909 (2009).
  - [172] Y. C. Wen, L. C. Chou, H. H. Lin, V. Gusev, K. H. Lin, and C. K. Sun, “Efficient generation of coherent acoustic phonons in (111) InGaAs/GaAs multiple quantum wells through piezoelectric effects,” *Applied Physics Letters* **90**, 172102 (2007).
  - [173] A. J. Kent, R. N. Kini, N. M. Stanton, M. Henini, B. A. Glavin, V. A. Kochelap, and T. L. Linnik, “Acoustic Phonon Emission from a Weakly Coupled Superlattice under Vertical Electron Transport: Observation of Phonon Resonance,” *Physical Review Letters* **96**, 215504 (2006).
  - [174] R. P. Beardsley, A. V. Akimov, M. Henini, and A. J. Kent, “Coherent Terahertz Sound Amplification and Spectral Line Narrowing in a Stark Ladder Superlattice,” *Physical Review Letters* **104**, 085501 (2010).
  - [175] S. M. Komirenko, K. W. Kim, A. A. Demidenko, V. A. Kochelap, and M. A. Strosio, “Generation and amplification of sub-THz coherent acoustic phonons under the drift of two-dimensional electrons,” *Physical Review B* **62**, 7459–7469 (2000).
  - [176] K. Shinokita, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, R. Hey, and C. Flytzanis, “Strong amplification of coherent acoustic phonons by intraminiband currents in a semiconductor superlattice,” *Physical Review Letters* **116**, 075504 (2016).

- [177] B. C. Daly, N. C. R. Holme, T. Buma, C. Branciard, T. B. Norris, D. M. Tennant, J. A. Taylor, J. E. Bower, and S. Pau, “Imaging nanostructures with coherent phonon pulses,” *Applied Physics Letters* **84**, 5180–5182 (2004).
- [178] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt, “Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides,” *Physical Review B* **56**, 10024–10027 (1997).
- [179] K. Mizoguchi, H. Takeuchi, T. Hino, and M. Nakayama, “Finite-size effects on coherent folded acoustic phonons in GaAs/AlAs superlattices,” *Journal of Physics – Condensed Matter* **14**, L103–L109 (2002).
- [180] P. Lawaetz, “Valence-Band Parameters in Cubic Semiconductors,” *Physical Review B* **4**, 3490 (1971).
- [181] H. C. Casey, D. D. Sell, and K. W. Wecht, “Concentration-dependence of absorption-coefficient for  $n$ -type and  $p$ -type GaAs between 1.3 and 1.6 eV,” *Journal of Applied Physics* **46**, 250–257 (1975).
- [182] J. Dreybrodt, F. Daiminger, J. P. Reithmaier, and A. Forchel, “Dynamics of carrier-capture processes in  $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  near-surface quantum-wells,” *Physical Review B* **51**, 4657–4660 (1995).
- [183] J. Christen and D. Bimberg, “Recombination dynamics of carriers in GaAs-GaAlAs quantum-well structures,” *Surface Science* **174**, 261–271 (1986).
- [184] A. Werner, M. Kunst, G. Beck, J. Christen, and G. Weimann, “Charge-carrier dynamics in GaAs multiple quantum-wells determined by contactless photoconductivity measurements,” *Physical Review B* **34**, 5918–5920 (1986).
- [185] Y. Arakawa, H. Sakaki, M. Nishioka, J. Yoshino, and T. Kamiya, “Recombination Lifetime of Carriers in GaAs-GaAlAs Quantum Wells near Room-Temperature,” *Applied Physics Letters* **46**, 519–521 (1985).
- [186] T. Dekorsy, G. C. Cho, and H. Kurz, “Coherent Phonons in Condensed Media,” in “Light Scattering in Solids VII, Fullerenes, Semiconductor Surfaces, Coherent Phonons,” , M. Cardona and G. Güntherodt, eds. (Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2000), pp. 169 – 209.
- [187] G. Rozas, M. F. Pascual Winter, A. Fainstein, B. Jusserand, P. O. Vaccaro, S. Saravanan, and N. Saito, “Piezoelectric semiconductor acoustic cavities,” *Physical Review B* **72**, 035331 (2005).
- [188] G. Rozas, M. F. Pascual Winter, A. Fainstein, B. Jusserand, P. O. Vaccaro, and S. Saravanan, “Acoustic phonon Raman scattering induced by a built-in electric field,” *Physical Review B* **77**, 165314 (2008).
- [189] G. C. Cho, W. Kutt, and H. Kurz, “Subpicosecond Time-Resolved Coherent-Phonon Oscillations in GaAs,” *Physical Review Letters* **65**, 764 (1990).
- [190] M. Hase, S. Nakashima, K. Mizoguchi, H. Harima, and K. Sakai, “Ultrafast decay of coherent plasmon-phonon coupled modes in highly doped GaAs,” *Physical Review B* **60**, 16526–16530 (1999).



- [191] R. I. Cottam and G. A. Saunders, “Elastic-constants of GaAs from 2 K to 320 K,” *Journal of Physics C – Solid State Physics* **6**, 2105–2118 (1973).
- [192] C. Rauch, G. Strasser, K. Unterrainer, W. Boxleitner, E. Gornik, and A. Wacker, “Transition between coherent and incoherent electron transport in GaAs/GaAlAs superlattices,” *Physical Review Letters* **81**, 3495–3498 (1998).
- [193] K. Mizoguchi, M. Hase, S. Nakashima, and M. Nakayama, “Observation of coherent folded acoustic phonons propagating in a GaAs/AlAs superlattice by two-color pump-probe spectroscopy,” *Physical Review B* **60**, 8262–8266 (1999).
- [194] L. H. Thomas, “The calculation of atomic fields,” *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society* **23**, 542–548 (1927).
- [195] E. Fermi, “Un metodo statistico per la determinazione di alcune prioriet  dell’atome,” *Rendicondi Accademia Nazionale de Lincei* **6**, 602–607 (1927).
- [196] H. Haug and S. Koch, *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors* (World Scientific, Singapore, 1993).
- [197] E. Burstein, “The anomalous optical absorption limit in InSb,” *Physical Review* **94**, 1431–1431 (1954).
- [198] T. Moss, “The interpretation of the properties of indium antimonide,” *Proceedings of the Physical Society B* **67**, 775–782 (1954).
- [199] M. Levinshtein, S. Rumyantsev, and M. Shur, *Handbook Series on Semiconductor Parameters, Volume 1: Si, Ge, C (Diamond), GaAs, GaP, GaSb, InAs, InP, InSb* (World Scientific, Singapore, New Jersey, Londong, Hong Kong, 1996).
- [200] S. Tarucha, H. Kobayashi, Y. Horikoshi, and H. Okamoto, “Carrier-induced energy-gap shrinkage in current-injection GaAs/AlGaAs MQW heterostructures,” *Japanese Journal of Applied Physics Part 1 – Regular Papers Short Notes & Review Papers* **23**, 874–878 (1984).
- [201] A. Tomita and A. Suzuki, “Carrier-induced lasing wavelength shift for quantum-well laser-diodes,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **23**, 1155–1159 (1987).



### Veröffentlichungen im Zusammenhang mit dieser Dissertation

1. F. Mahler, J. W. Tomm, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, C. Flytzanis, V. Hoffmann, and M. Weyers, „Ultrafast carrier dynamics in a GaN/Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N superlattice“, *Physical Review B* **97**, 161303(R) (2018).
2. F. Mahler, J. W. Tomm, K. Reimann, M. Woerner, V. Hoffmann, C. Netzel, M. Weyers, and T. Elsaesser, „Time-resolved photoluminescence from *n*-doped GaN/Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N short-period superlattices probes carrier kinetics and long-term structural stability“, *Journal of Applied Physics* **125**, 185705 (2019).
3. F. Mahler, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, C. Flytzanis, and K. Biermann, „Impact of piezoelectric fields on coherent zone-folded phonons in GaAs/AlAs superlattices“, *Physical Review B* **100**, 121302(R) (2019).

### Weitere Veröffentlichungen

4. J. Hyyti, M. Perestjuk, F. Mahler, R. Grunwald, F. Güell, C. Gray, E. McGlynn, and G. Steinmeyer, „Field enhancement of multiphoton induced luminescence processes in ZnO nanorods“, *Journal of Physics D: Applied Physics* **51**, 105306 (2018).
5. F. Mahler, R. Kernke, J. W. Tomm, H. König, B. Stojetz, M. Ali, and A. Lell, „By-emitter Analysis of 450-nm Emitting High-Power Diode Laser Bars“, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **25**, 1500506 (2019).
6. M. Anikeeva, M. Albrecht, F. Mahler, J. W. Tomm, L. Lymperakis, C. Chèze, R. Cailarco, J. Neugebauer, and T. Schulz, „Role of hole confinement in the recombination properties of InGaN quantum structures“, *Scientific Reports* **9**, 9047 (2019).
7. C. Netzel, V. Hoffmann, J. W. Tomm, F. Mahler, S. Einfeldt, and M. Weyers, „Temperature-Dependent Charge Carrier Diffusion in [000 $\bar{1}$ ] Direction of GaN Determined by Luminescence Evaluation of Buried InGaN Quantum Wells“, *Physica Status Solidi B* **2020**, 2000016 (2020).
8. V. G. Talalaev, J. W. Tomm, S. A. Kukushkin, A. V. Osipov, I. V. Shtrom, K. P. Kotlyar, F. Mahler, J. Schilling, R. R. Reznik, and G. E. Cirlin, „Ascending Si diffusion into growing GaN nanowires from the SiC/Si substrate: up to the solubility limit and beyond“, *Nanotechnology* **31**, 294003 (2020).
9. J. Ruschel, J. Glaab, F. Mahler, T. Kolbe, S. Einfeldt, and J. W. Tomm, „In-situ spectroscopic analysis of the recombination kinetics in UVB LEDs during their operation“, *Applied Physics Letters* **117**, 121104 (2020).

## Konferenzbeiträge

Die vortragende Person ist jeweils unterstrichen.

1. F. Mahler, J. W. Tomm, „Thermographische Messungen an GaN-basierten Hochleistungsdioden“, *Thermographie-Kolloquium der Deutschen Gesellschaft für Zerstörungsfreie Prüfung*, Berlin (2017).
2. F. Mahler, K. Reimann, J. W. Tomm, M. Woerner, T. Elsaesser, V. Hoffmann, M. Weyers, „Defect Spectroscopy of AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> Superlattices“, *17th Conference on Defects – Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors (DRIP XVII)*, Valladolid, Spanien (2017).
3. F. Mahler, K. Reimann, J. W. Tomm, M. Woerner, T. Elsaesser, C. Flytzanis, V. Hoffmann, M. Weyers, „Ultrafast Carrier Dynamics in AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> Superlattices by Time-Dependent Reflectivity Measurements“, *Photonics Europe*, Straßburg, Frankreich (2018).
4. M. Anikeeva, T. Schulz, C. Chèze, R. Calarco, J. W. Tomm, F. Mahler, L. Lymperakis, M. Albrecht, „Carrier localization and interwell coupling of ML-thick In<sub>0.25</sub>Ga<sub>0.75</sub>N QWs in the InGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> superlattices“, *International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS)*, Montpellier, Frankreich (2018).
5. F. Mahler, K. Reimann, J. W. Tomm, M. Woerner, T. Elsaesser, C. Flytzanis, V. Hoffmann, M. Weyers, „Ultrafast Carrier Dynamics in AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> Superlattices by Time-Dependent Reflectivity Measurements“, *International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS)*, Montpellier, Frankreich (2018).
6. J. W. Tomm, F. Mahler, „GaN-based Optoelectronics – from Fundamentals to Applications“, *Institutskolloquium im Key Laboratory of Polar Materials and Devices (MOE), Department of Optoelectronics, East China Normal University*, Shanghai, China (2018).
7. Invited: J. W. Tomm, F. Mahler, „Spectroscopy of GaN-based Superlattices“, *10th International Conference on Photonics and Applications*, Ha Long City, Vietnam (2018).
8. J. W. Tomm, F. Mahler, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, V. Hoffmann, C. Netzel, M. Weyers, „The impact of SiN protective coatings to Ga<sub>N</sub>/Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N short-period superlattices: defect generation and adsorption effects“, *18th Conference on Defects – Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors (DRIP XVIII)*, Berlin (2019).
9. F. Mahler, K. Reimann, J. W. Tomm, M. Woerner, T. Elsaesser, C. Flytzanis, V. Hoffmann, M. Weyers, „Defect-related ultrafast carrier kinetics in AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> superlattices“, *18th Conference on Defects – Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors (DRIP XVIII)*, Berlin (2019).
10. C. Netzel, V. Hoffmann, S. Einfeldt, M. Weyers, F. Mahler, J. W. Tomm, „Accessing the charge carrier diffusivity and non-radiative recombination in Ga<sub>N</sub> waveguide layers for laser diodes“, *18th Conference on Defects – Recognition, Imaging and*

*Physics in Semiconductors (DRIP XVIII)*, Berlin (2019).

### **Auszeichnungen**

- *Best Poster Award* der 17th Conference on Defects – Recognition, Imaging and Physics in Semiconductors (DRIP XVII), Valladolid (2017)



Zum Schluss möchte ich mich bei den Menschen bedanken, die mich in den letzten Jahren begleitet und diese Dissertation ermöglicht haben. Herrn Prof. Dr. Thomas Elsässer danke ich sehr für die Betreuung meiner Dissertation, für die Möglichkeit, im Max-Born-Institut forschen und arbeiten zu dürfen und für die zielführenden Ideen zu dieser Arbeit.

Herrn Dr. Jens W. Tomm danke ich für die Erläuterungen und Diskussionen zur optische Halbleiterspektroskopie, die Anleitung zu den verschiedenen Photolumineszenz-experimenten, sowie die lehrreiche Einbeziehung in die Projektarbeit. Herrn Prof. Dr. Klaus Reimann möchte ich sehr herzlich danken für die geduldige Beantwortung meiner zahlreichen Fragen in allen physikalischen Themen. Mein Dank gebührt auch Herrn Dr. Michael Wörner für die ausführlichen Erläuterungen zur Theorie und Herrn Prof. Dr. Günter Steinmeyer für die Hilfestellung in der Anrege-Abfrage-Spektroskopie. Frau Sandy Schwirzke-Schaaf möchte ich ganz herzlich danken für sämtliche Tipps und Tricks im Labor sowie ihre tatkräftige Unterstützung bei den verschiedenen Messungen.

Des Weiteren möchte ich mich bei Herrn Dr. Carsten Netzel und Herrn Dr. Veit Hoffmann vom Ferdinand-Braun-Institut für die Probenherstellung sowie für die Diskussion nitridbezogener Fragestellungen bedanken. Auch Herrn Dr. Klaus Biermann vom Paul-Drude-Institut möchte ich für die Bereitstellung der GaAs-basierten Übergitter danken.

Ich möchte auch den Menschen danken, die mich während meiner Promotionszeit im und außerhalb des Instituts begleitet und den Alltag mit vielen Gesprächen und Diskussionen im Labor, in der Mensa oder auch an der Kaffeemaschine verschönert haben: Dr. Esmerando Escoto, Dr. Lorenz von Grafenstein, Pia Fürtjes, Klaudia Filipek, Robert Kernke, Dr. Michael Jasiulek, Dr. Ahmed Ghalgaoui, Dr. Marcel Holtz, Floriana Laudani, Dr. Janne Hyyti, Dr. Nils Raabe und vielen mehr.

Zu guter Letzt möchte ich meiner Familie danken, die mir während dieser herausfordernden Zeit immer unterstützt und den nötigen Rückhalt gegeben hat.





---

## Selbstständigkeitserklärung

---

Ich erkläre, dass ich die Dissertation selbstständig und nur unter Verwendung der von mir gemäß § 7 Abs. 3 der Promotionsordnung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät, veröffentlicht im Amtlichen Mitteilungsblatt der Humboldt-Universität zu Berlin Nr. 42/2018 am 11.07.2018 angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe.

Berlin, 15. Oktober 2020

Felix Mahler